

**Siliziumcarbid-Bildung auf Silizium unter den Bedingungen der
Molekularstrahlepitaxie**

Friedhelm Scharmann

**Dissertation zur Erlangung des akademischen Grades eines
Doktor-Ingenieurs**

**vorgelegt der
Fakultät Elektrotechnik und Informationstechnik der Technischen
Universität Ilmenau**

Berichterstatter:

Univ.-Prof. Dr.-Ing. habil. Dr. rer. nat. C. Knedlik, TU Ilmenau

Privatdozent Dr. –Ing. habil. L. Spieß, TU Ilmenau

**Ass. Prof. Marian Veselý Ph.D., Slovak University of Technology
Bratislava, Slovakia**

Vorgelegt am:

14. Mai 2001

Tag der wissenschaftlichen Aussprache:

14. Juni 2002

Verfahrens-Nummer:

EI 122

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	I
Verwendete Symbole	III
Einleitung	1
1 Siliziumcarbid – Kristallstruktur, Polytypie, Materialeigenschaften	3
2 Wachstum von SiC	8
2.1 SiC-Einkristallzucht	8
2.2 Epitaxie von SiC	9
2.3 Karbonisierung	14
2.4 Heteroepitaxie von SiC auf Si	18
3 Molekularstrahlepitaxie	20
3.1 Reinigung der Si-Oberfläche	20
3.2 Schichtpräparation	22
4 Atomkraftmikroskopie	25
5 Elektronenbeugung im streifenden Einfall	27
5.1 Entstehung des Beugungsbildes bei RHEED	27
5.2 Extinktion	32
5.3 Potentialbestimmung	37
5.4 Zusammenfassung	49
6 Kristallographische Strukturen der Kristall-Oberfläche	50
7 Kohlenstoff induzierte Rekonstruktionen auf der Si-Oberfläche	53
7.1 Wechselwirkung von Kohlenstoff mit der Si(111)-Oberfläche	53
7.2 Wechselwirkung von Kohlenstoff mit der Si(100)-Oberfläche	61

7.3 Vergleich zwischen den Kohlenstoff induzierten Rekonstruktionen auf der Si(111)- und der Si(100)-Oberfläche	69
7.4 Oberflächendiffusionskoeffizient von Kohlenstoff auf rekonstruierten Si-Oberflächen	70
7.5 Zusammenfassung	79
8 Strukturanalyse mit RHEED	80
8.1 RHEED-Simulationsmodell	81
8.2 Strukturermittlung für die $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30° - Rekonstruktion	83
8.3 Strukturermittlung für die c(4x4)-Rekonstruktion	91
8.4 Polytypanalyse von Epitaxieschichten mit RHEED	97
8.4.1 Dreidimensionale Beugung	97
8.4.2 Zweidimensionale Beugung	99
8.5 Zusammenfassung der Simulationsergebnisse	104
9 Untersuchungen zur Keimbildung von SiC auf Si	105
9.1 Bestimmung der kritischen Keimgröße für das SiC-Wachstum	105
9.2 Untersuchungen zum SiC-Initialwachstum auf Si	111
9.2.1 Auswertung der SiC-Inkubationszeit	111
9.2.2 Auswertung der 3C-SiC-RHEED-Intensitätsanstiegszeit	116
9.3 Zusammenfassung	124
10 Zusammenfassung und Ausblick	126
11 Literaturverzeichnis	128
Anhang	135
Strukturfile für die Simulation	135
Abbildungsverzeichnis	137
Tabellenverzeichnis	140

Verwendete Symbole

Im folgenden werden nur die wichtigsten Abkürzungen und Symbole aufgeführt, die auch in den Diagrammen Anwendung fanden. Weitere, in den Formeln benutzte Symbole, werden unmittelbar im Text erklärt.

AES	Auger-Elektronen-Spektroskopie
AFM	Atomkraftmikroskop
ALE	epitaktisches Abscheiden von Atomlagen
CVD	Gasphasenabscheidung
GSMBE	Gasquellen Molekularstrahlepitaxieanlage
SSMBE	Feststoffquellen Molekularstrahlepitaxieanlage
LEED	Beugung langsamer Elektronen mit steilem Einfall
LPCVD	Niederdruck CVD
LPE	Flüssigphasenepitaxie
MBE	Molekularstrahlepitaxieanlage
ML	Monolagen
NPCVD	Normaldruck CVD
RHEED	Beugung schneller Elektronen im streifenden Einfall
REM	Rasterelektronenmikroskop
RTP	schnelle thermische Prozesse
STM	Raster -Tunnel- Mikroskop
TEM	Transmissionselektronenmikroskop
XPD	Röntgen-Photoelektronenbeugung
XPS	Röntgenphotoemissionsspektroskopie
A_F	Kristalloberfläche
A	Amplitude der gebeugten Elektronenwelle
D	Diffusionskoeffizient
D_c	Diffusionsrate für den Kohlenstoff
E_A	Aktivierungsenergie
\underline{G}	Punktgitter des reziproken Raumes
I	RHEED-Intensität
J_{nuc}	Nukleationsrate
L	Domänenengröße
n_i	Keimdichte
P	Wahrscheinlichkeit für Keimbildung
R_G	allgemeine Gaskonstante
R	Wachstumsrate
Rc	Relative Rate (Quadrupol)

Verwendete Symbole

S	Übersättigung der Keimumgebung
T	Wachstumstemperatur
Z	Kernladungszahl
c	Lichtgeschwindigkeit
d	Abstand der Netzebenen
g	Punktgitter des Realraumes
i	kritische Keimgröße
j_c	Kohlenstofffluß
\underline{k}	Wellenvektor der einfallenden Welle
\underline{k}'	Wellenvektor der ausfallenden Welle
k	Boltzmannkonstante
e	Elementarladung des Elektrons
m_0	Ruhemasse des Elektrons
n_c	Menge an Kohlenstoff in den obersten Lagen, die für eine Rekonstruktionsausbildung zur Verfügung steht
r	Radius des Keimes
r_{vis}	mit RHEED detektierbarer Keimradius
v	mittlere Wachstumsgeschwindigkeit
Δ	mittlere freie Weglänge der Elektronen im Kristall
Φ	mittleres inneres Potential
ζ	Maß für die Dämpfung des Elektronenstrahls beim Eintritt in den Kristall
Θ_B	relativer Bedeckungsgrad einer Oberfläche mit einer Rekonstruktion
Θ_{BC}	Θ_B abhängige Bedeckung einer Oberfläche mit Kohlenstoff während der Ausbildung einer kohlenstoffinduzierten Rekonstruktion
Ω	Volumen der Elementarzelle
λ	de Broglie Wellenlänge
γ	Oberflächenenergie
β	Geometriebeschreibung des Keimes
ν	Anzahl der Atome, die eine asymmetrische Einheit bilden
ϑ	Volumen der asymmetrischen Einheit ν
τ	mittlere Zeit zwischen zwei Keimbildungen
\bar{l}	mittlere freie Weglänge von Teilchen im Vakuum
σ	Streuquerschnitt
μ	elektronenoptischer Brechungsindex

Einleitung

Siliziumkarbid (SiC) ist ein Halbleitermaterial mit großem Bandabstand und einem guten Wärmeleitungsvermögen, das es erlaubt, Bauelemente für die Leistungselektronik, Mikrowellenanwendung und der Hochtemperaturelektronik herzustellen. Die ersten industriell gefertigten Bauelemente sind mit der Herstellung von MESFETS und UV-Sensoren von Cree Inc. und mit Schottkydioden von Siemens (SiCED) gegeben. Die Markteinführung der SiC-Schottkydiode von Siemens ist in [Rup01] ausführlich beschrieben. Die Materialdefekte (Mikroröhrchen) und die hohe Versetzungsdichte in den SiC-Einkristallen sind gegenwärtig noch das Grundproblem und verhindern generell die Massenfertigung von SiC-Bauelementen. Die SiC-Einkristallzucht und die mechanische Bearbeitung der sehr harten SiC-Einkristalle zu Wafern ist immer noch der entscheidende Kostenfaktor (1800 DM für 2“ SiC-Wafer bei Cree Inc., Stand Sept.00). Damit ergibt sich ein Verhältnis zwischen Preis und Waferoberfläche, welches zwischen 200 – 300 ungünstiger ist als bei den Si-Wafern.

Eine Alternative zur Einkristallzucht und Waferpräparation besteht in der heteroepitaktischen Abscheidung dünner strukturell hochwertiger preisgünstiger SiC-Schichten z.B. mittels chemischer Dampfphasenabscheidung (CVD) auf Si. Damit wäre zugleich eine hohe Kompatibilität zur Si-Mikroelektronik gegeben. Trotz großer Fortschritte bei der SiC-Abscheidung auf Si bleiben eine Vielzahl von Problemen bestehen, die neben den erheblichen Unterschieden in den Gitterkonstanten (20 %) und thermischen Ausdehnungskoeffizienten (8 %) und u.a. in den hohen Abscheidetemperaturen begründet sind. Die Qualität der Grenzfläche zwischen Si und SiC und die Spannungen in der aufwachsenden SiC-Schicht sind Ausdruck dieser Probleme und schränken die Anwendung dieser Schichtsysteme für die Bauelementeherstellung stark ein. Ausgehend vom derzeit erreichten Stand der Schichtpräparation gibt es viele Überlegungen zum Einsatz von mit SiC beschichteten Si-Wafern wie z.B. Sensoren auf SiC-Basis und als Substratmaterial für GaN. Für die Leuchtdioden aus GaN hat sich in den letzten Jahren ein großer Markt entwickelt. Wafer aus GaN sind kommerziell nicht erhältlich und deswegen muß auf Fremdsubstrate zurückgegriffen werden. Die Verwendung des Heteroepitaxiesystems SiC/Si als Substratmaterial für GaN hätte gegenüber Saphir z.B. den Vorteil der Durchkontaktierung. Es besteht also ein großes technologisches Interesse an dünnen SiC-Schichten auf Si, welches die Bedeutung der Aufklärung des SiC-Wachstumsprozesses auf Si hervorhebt.

Mit dieser Arbeit sollen die Initialvorgänge bei der Bildung von SiC auf Si untersucht und klassifiziert werden. Dazu ist es notwendig, grundlegende Untersuchungen zu morpholo-

gischen und strukturellen Veränderungen während der Kohlenstoff-Silizium-Wechselwirkung durchzuführen. Die Analyse der ablaufenden Prozesse (Phasenübergänge) soll genutzt werden, um physikalische Parameter zu extrahieren, die es ermöglichen, einen gezielten Einfluß auf die Keimbildung, die Grenzflächenstruktur und der Oberflächenstruktur auszuüben. Die Ergebnisse finden ihren Niederschlag in der Weiterentwicklung bestehender Wachstumsmodelle.

Um möglichst definierte Untersuchungsbedingungen zu haben wurden die Experimente in einer MBE-Anlage durchgeführt. Mit keinem anderen Epitaxieverfahren ist es möglich einen Bereich an unterschiedlichen Abscheidebedingungen so exakt und reproduzierbar einzustellen. Desweiteren ermöglicht die MBE ausgiebige *in situ* Untersuchungen. Die Wechselwirkung des Kohlenstoffs mit der Si-Oberfläche wurde mit der *in situ* Untersuchungsmethode RHEED untersucht. Ergänzend dazu wurden *ex situ* Untersuchungen mit AFM und Ellipsometrie durchgeführt. Die experimentellen Arbeiten wurden durch theoretische Betrachtungen und Simulationen ergänzt.

1 Siliziumcarbid – Kristallstruktur, Polytypie,

Materialeigenschaften

Siliziumcarbid ist ein mechanisch und chemisch außerordentlich stabiler Stoff. Durch naßchemische Verfahren wird SiC praktisch nicht angegriffen. Die hohe Härte des Materials (Mohs-Härte 9,5) erschwert eine Bearbeitung wie z.B. Sägen und Polieren, hat aber den Vorteil, daß durch mechanische Einflüsse kaum Schäden an der Oberfläche auftreten können. Diese makroskopischen Materialeigenschaften resultieren aus den Bindungsverhältnissen zwischen Kohlenstoff und Silizium. In SiC bilden Silizium- und Kohlenstoffatome mit jeweils dem anderen Partner vier tetraedrische Verbindungen aus. Als direkte Folge der Elektronegativitätsdifferenz zwischen Kohlenstoff und Silizium besitzt die Bindung einen kovalent - ionischen Charakter mit ca. 80 % der Bindungsladung beim Kohlenstoff (Tabelle 1.1).

Parameter	Einheit	Si	C
Elektronegativität		1,74	2,50
Bindungslänge	[Å]	2,35	Diamant: 1,54 Graphit: 1,42 (\perp C) 3,35 (\parallel C)
Dichte	[g/cm ³]	2,328	Diamant: 3,514 Graphit: 2,266
Atomradius (kovalent)	[Å]	1,17	0,77
Lineare thermische Ausdehnungskoeff.	* 10 ⁻⁶ [1/°C] (bei 100°C)	2,6 ⁽¹⁾	Diamant: 1,3 ⁽²⁾ Graphit: 7,9 ⁽²⁾
Schmelztemperatur	[°C]	1410 2477 (Siedepunkt)	3750 (125*10 ³ hPa) 3370 (Sublimation)
Isotope	Masse [u] (Atomprozent)	28 (92,27) 29 (4,68) 30 (3,05)	12 (98,89) 13 (1,108) 14 (Spuren)

Tabelle 1.1: Physikalische Parameter von Silizium und Kohlenstoff (nach [Hol76], [Sze81]⁽¹⁾, [Kuc88]⁽²⁾)

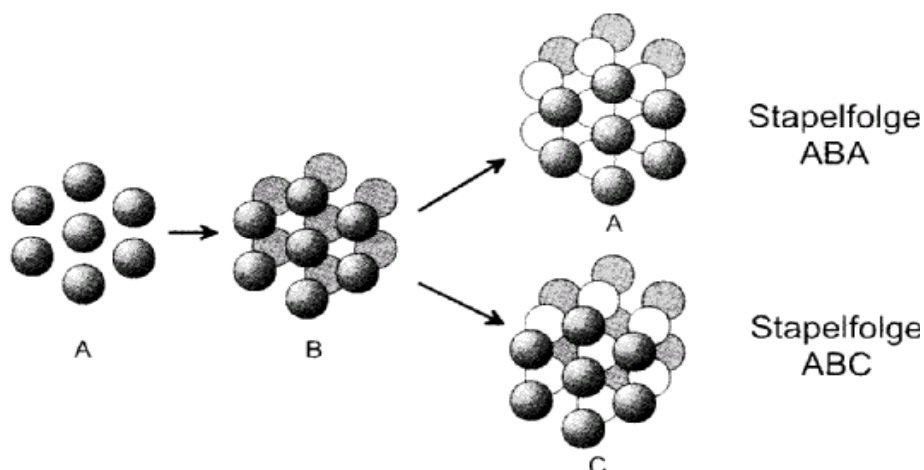


Abb.1.1: Möglichkeiten für die Stapelung von Bilagen

Durch Aneinanderreihung der Tetraeder, bestehend aus Si- und C-Atomen, entstehen Doppellagen (Bilagen). Für den Aufbau des Kristalls aus den Bilagen ergeben sich unterschiedliche Möglichkeiten, gemäß Abb. 1.1. In dem kubischen 3C-SiC sind die einzelnen Bilagen um $1/3$ der Raumdiagonalen in der Zinkblendestruktur gegeneinander verschoben. Die Richtung der Verschiebung wird hierbei konstant gehalten. In der Abb. 1.1 wäre dies die Stapelfolge ABC. Wird die dritte Doppellage so verschoben, daß die Atompositionen in der senkrechten Projektion identisch mit der ersten Lage A ist, so bekommt man die Stapelfolge ABA. Die Möglichkeit des SiC's unterschiedliche Stapelfolgen im periodischen Wechsel vorzunehmen führt zur Bildung von Polytypen. Die Stapelfolge ABA der einzelnen Bilagen ist bei den hexagonalen und bei den rhomboedrischen Polytypen des SiC's zu finden. Die hexagonalen und rhomboedrischen Polytypen werden auch als α -Modifikation des SiC's und der kubische Polytyp 3C-SiC als β -SiC bezeichnet. Beim SiC sind rund 200 unterschiedliche Polytypen bekannt.

Die Ramsdell – Notation [Ram47] ist die verbreitetste Notation, nach der die verschiedenen SiC – Polytypen bezeichnet werden. Sie wird zusammengesetzt aus der Anzahl der Doppellagen, nach der sich die Abfolge wiederholt, und aus der Kristallsymmetrie (C – kubisch, H – hexagonal, R – rhomboedrisch). Die technologisch wichtigsten SiC – Polytypen sind 3C-SiC, 4H-SiC, 6H-SiC und 15R-SiC. Die Stapelfolge für diese Polytype lautet:

3C-SiC	(ABC)
4H-SiC	(ABCB)
6H-SiC	(BACABC)
15R-SiC	(ABCBA CABAC BCACB)

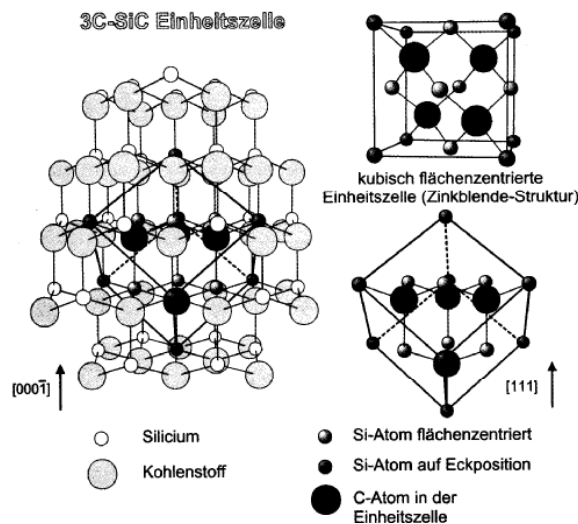


Abb. 1.2: Die 3C-SiC Einheitszelle aus verschiedenen Blickrichtungen

Der SiC-Polytyp mit dem größten Bandabstand, das 2H-SiC mit 3,3 eV, lässt sich derzeit noch nicht gezielt durch einen Wachstumsprozeß erzeugen. Bei der Heteroepitaxie von SiC auf Si entsteht meist 3C-SiC, daher beziehen sich die nachfolgenden Untersuchungen vorrangig auf diesen Polytyp. Die Zinkblendestruktur des 3C-SiC in Abb. 1.2 kann aus zwei ineinander geschobenen kubisch flächenzentrierten Gittern konstruiert werden. In dieser modellhaften Zerlegung besteht das eine kubisch flächenzentrierte Gitter aus Kohlenstoffatomen und das andere Gitter aus Siliziumatomen. Die Einheitszelle in der Abb. 1.2 wird durch (100)-Flächen seitlich begrenzt. Eine Stapelung von Bilagen ist in der [111] - Richtung erkennbar, was einer Raumdiagonalen in der Zinkblendestruktur entspricht.

Die einzelnen Polytypen des SiC's haben unter anderem unterschiedliche elektrische Eigenschaften, wie Bandabstand, Elektronen - und Löcherbeweglichkeit. Die wichtigsten Eigenschaften der am häufigsten untersuchten SiC Polytypen werden in der Tabelle 1.2 mit Silizium und GaAs verglichen, um daraus mögliche Anwendungsgebiete abzuleiten:

1) Die mikromechanischen Bauteile und Sensoren aus SiC können in aggressiven Umgebungen (Chemiebereich, Verbrennungsmotoren, Triebwerke) und zudem bei hoher Temperatur eingesetzt werden. In vielen Fällen kann die ausgefeilte Si-Technologie hierbei weiter benutzt werden. Auf dem strukturierten Si-Substrat wird eine SiC-Schicht nur auf bestimmten Bereichen aufgebracht. In [Son00, Car00] sind Beispiele für eine derartige Herstellung von mikromechanischen Bauteilen zu finden. Die SiC-Sensoren sind gegen mechanische Beschädigungen relativ resistent.

2) Die SiC-Mikromechanik kann mit einer SiC-Elektronik zur Mikrosystemtechnik kombiniert werden, die unter den gleichen extremen Arbeitsbedingungen einsetzbar ist. Das für die elektrische Isolation der Bauelemente notwendige temperaturstabile Material liegt in Form von Siliziumdioxid (SiO_2) und Aluminiumnitrid (AlN) vor, wobei letzteres epitaktisch auf dem SiC abgeschieden werden kann. Für die ohmsche Kontaktierung existieren leitende Metall-Kohlenstoff- bzw. Metall-Silizium-Verbindungen (Wolframcarbid (WC), Wolframsilicid (WSi_2) und Titansilicid (TiSi_2)). Ein gassensitiver SiC-MOSFET ist in [Sav00] auch noch bei Temperaturen bis 775°C funktionsfähig. In der Veröffentlichung von [Leb00] wird von der Entwicklung von Schottky-Dioden auf 6H-SiC Basis berichtet, welche zur Detektion von radioaktiven Alpha-Teilchen eingesetzt werden.

3) Die SiC-Leistungsdioden sind aufgrund der hohen Durchbruchspannung des SiC bis um den Faktor 8 kleiner als vergleichbare Si-Dioden. Die Leistungselektronik kann wegen der höheren Strombelastbarkeit und der höheren Durchbruchspannung kompakter gebaut werden (höherer Integrationsgrad) und zudem leitet das SiC näherungsweise dreimal so gut die Wärme wie das Silizium. Die SiC-Elektronik ist im Gegensatz zur Siliziumelektronik, die bis maximal 125°C fehlerfrei arbeitet, auch noch bei Temperaturen von 600°C einsetzbar. Bei den unipolaren Bauelementen wäre hier die Entwicklung einer Schottkydiode mit einer Sperrspannung von 3,5 kV zu nennen [Wah00]. Der Leckstrom beträgt bei 3,5 kV nur $5 \cdot 10^{-6} \text{ A cm}^{-2}$. Eine bipolare Leistungsdiode mit einer Stromdichte von 55 kA/cm^2 in Durchlaßrichtung wird in [Dya00] beschrieben. Ein Thyristor mit einer Sperrspannung von 2600 V und einem Durchlaßstrom von 12 A stellt derzeit die höchste schaltbare elektrische Leistung für ein SiC-Einzelbauelement dar [Aga00].

4) Die SiC-Elektronik ist wegen des doppelten Bandabstandes im Vergleich zum Silizium bedeutend unempfindlicher gegen elektromagnetische Störstrahlung. Die Lebensdauer der Bauelemente wird durch die mögliche Bildung von Materialdefekten herabgesetzt. Die Erzeugung von Defekten in der kristallinen Struktur von SiC erfordert deutlich mehr Energie als bei GaAs oder Silizium. Die möglichen Einsatzgebiete der SiC-Elektronik sind daher die Raumfahrt, der Militärbereich und der Medizinbereich.

5) SiC ist ein geeignetes Material für Hochfrequenzleistungsbaulemente mit hohen Ausgangsleistungen, die auch bei hohen Temperaturen (hervorgerufen durch Eigen- oder Fremderwärmung) funktionieren. Der SiC-MESFET ist das derzeit vielversprechendste SiC-HF-Bauelement. Die mit einem SiC MESFET von Thomson erreichte Ausgangsleistung von 1,8 W/mm bei einer Frequenz von 2 GHz ist doppelt so groß wie die jemals mit GaAs-MESFET erreichten Werte [Nob00]. Daraus resultiert eine mögliche Anwendung dieses Bauelementes

als Leistungsverstärker im Frequenzbereich bis zu 10 GHz mit Ausgangsleistungen, die von den Konkurrenten der III-V Elektronik, bis auf GaN, bei weitem nicht erreicht werden können.

6) Die unterschiedlichen elektronischen Strukturen der einzelnen SiC-Polytypen ermöglichen prinzipiell die Schaffung von chemisch homogenen Hetero- und niedrigdimensionalen Strukturen [Fis00]. Dies könnte für die Entwicklung von neuartigen Quantenbauelementen, unter Ausnutzung von unterschiedlich großen Bandabständen, genutzt werden.

Parameter	Einheit	Si	GaAs	3C-SiC	4H-SiC	6H-SiC
Gitterkonst.	[Å]					
a-Richt.		5,43 ⁽¹⁾	5,65	4,359 ⁽²⁾	3,076 ⁽²⁾	3,081 ⁽²⁾
c-Richt.		-	-	-	10,05 ⁽²⁾	15,12 ⁽²⁾
Bandabst. E _g	[eV]	1,12	1,43	2,417 ⁽³⁾	3,292 ⁽³⁾	3,050 ⁽³⁾
Elektronenaffinität	X [eV]	4,05	4,07	3,70	3,22	3,77
Thermische Leitfähigkeit	λ [10 ² W/Km]	1,5	0,5	5	5	5
Thermischer Ausdehnungsk.	α [10 ⁻⁶ /K]	2,6	6,86	2,77	2,391	2,478
Durchbruchfeldstärke	E _b [MV/cm]	0,3	0,4	3	4	4
Elektronenbeweglichkeit (300K)	μ_n [cm ² /Vs]	1400	8500	900	400	400
Löcherbeweglichkeit (300K)	μ_p [cm ² /Vs]	600	400	24	60	40
Sättigungsdriftgeschwindigk.	v _{drift} [10 ⁵ cm/s]	100	200	300	200	200
Brechungsindex	n (632,8 nm)	3,88	3,86	2,64	2,779	2,637
Schmelzpunkt	T _m [°C]	1410	1238			
Dichte	[g/cm ³]	2,328 ⁽⁴⁾	5,31 ⁽⁴⁾	3,22 ⁽⁴⁾	3,22 ⁽⁴⁾	3,22 ⁽⁴⁾

Tabelle 1.2: Vergleich wichtiger Eigenschaften (nach [Sze81] ⁽¹⁾, [Tai77] ⁽²⁾, Exzitonische Bandlücke (aus opt. Daten) bei 2K [Cho90] ⁽³⁾, [Lan82] ⁽⁴⁾). Die Elektronenaffinität und der Bandabstand sind bei 300 K bestimmt worden.

2 Wachstum von SiC

2.1 SiC-Einkristallzüchtung

Das SiC kommt in der Natur relativ selten vor und muß wegen zu geringer Kristallgröße und der geforderten Reinheit in der Halbleiterindustrie technisch hergestellt werden. Großtechnisch kommen drei verschiedene Verfahren zur Anwendung (Acheson-, Lely- und das modifizierte Lely-Verfahren). Es wurde zuerst mit einem im Jahre 1892 von E.G.Acheson entwickelten Verfahren aus Graphit und Siliziumdioxid technisch hergestellt [Ach92]. Bei diesem Acheson – Verfahren wird nur stark getrübbes SiC hergestellt. Die Acheson – Kristalle sind typischerweise tiefblau, bedingt durch den Einbau von Aluminium bis zur Löslichkeitsgrenze. Für die Herstellung von Halbleiterbauelementen haben diese Kristalle keine Bedeutung.

In dem Lely - Verfahren wird bei ca. 2200°C SiC - Pulver sublimiert, welches anschließend durch ein poröses Graphitrohr diffundiert und in dem kälteren Bereich des Ofens kondensiert [Lel55]. Hier kommt es durch spontane Keimbildung zum Wachstum von farblosen bis graugrünen Kristallen. Wegen der geringen Ausbeute an Kristallen brauchbarer Größe und den relativ starken Verunreinigungen spielen diese Kristalle bei der Herstellung elektronischer Bauelemente ebenfalls keine Rolle.

Bei dem modifizierten Lely-Verfahren kondensiert das sublimierte Material an einem eingebrachten Keim [Tai78]. Der Keim bestimmt damit auch den Polytyp des wachsenden Kristalls. Die Steuerung des Temperaturgradienten, des Drucks und der Diffusion in dem Züchtungs-ofen ist für das Wachstum des SiC's entscheidend. Der größte Teil der kommerziell vertriebenen 4H- und 6H-SiC - Wafer wird nach diesem Verfahren hergestellt. Die Dotierung der SiC -Einkristalle mit dem modifizierten Lely - Verfahren wird durch eine Einleitung von Stickstoff (n - dotiert) oder durch Zugabe von Aluminium (p - dotiert) erreicht. Der weltweit führende Hersteller von SiC-Wafern, Cree Inc, bietet 6H- und 4H-SiC-Wafer mit einem Durchmesser von bis zu 75 mm an. Die Defektdichte des Kristalls ist soweit reduziert worden, daß z.B. die Anzahl an Mikroröhrchen (Micropipes) bei $1,1 \text{ cm}^{-2}$ liegt [Cre99]. Die geringen Wachstumsgeschwindigkeiten von einigen mm/h und die schwierige Bearbeitung der harten SiC-Einkristalle zu Wafern treibt die Kosten enorm in die Höhe. Ein 4H-Wafer (2“) kostet z.B. bei der amerikanischen Firma Cree Research, Inc. 1000 \$. Dies und die Qualität der Einkristalle, die der des Siliziums in den 60 - 70er Jahren entspricht, behindern immer noch die Massenproduktion von SiC-Bauelementen.

2.2 Epitaxie von SiC

Unter dem Begriff Epitaxie versteht man im Allgemeinen das gesetzmäßig orientierte Aufwachsen einer 2. Substanz auf einem Träger. Die Epitaxieschichten verfügen über eine bessere Kristallinität und geringere Defektdichte und können in einem weiten Bereich gezielt dotiert werden.

Unter Homoepitaxie wird der Vorgang gesetzmäßig orientierter Aufwachsung einer kristallinen Substanz verstanden, die sich vom Substrat nur geringfügig bezüglich der chemischen Zusammensetzung unterscheidet, z.B. die Abscheidung von unterschiedlich dotierten Schichten. Bei der Homoepitaxie wird die Vorgabe der Gitterstruktur durch das Substratmaterial ausgenutzt. Es wird zwischen drei Wachstumsarten unterschieden:

- (1) *Stufenwachstum* (Step-Flow),
- (2) *zweidimensionales Inselwachstum* (2D-Wachstum),
- (3) *dreidimensionales Wachstum* (3D- oder Multilagenwachstum).

Für die Homoepitaxie von SiC – Polytypen ist das Stufenwachstum der ideale Wachstumsmechanismus. Beim Step-Flow Wachstum diffundieren die Atome oder Molekülbruchstücke (Bausteine) auf der Oberfläche zu den Stufenkanten des Substrates und die Bausteine werden bevorzugt dort eingebaut. Der Name Step-Flow kommt dadurch zustande, daß die einzelnen Stufen während des Kristallwachstums über die Oberfläche zu 'gleiten' scheinen. Die Reproduktion der Kristallstruktur wird also durch eine gestufte Waferoberfläche unterstützt. Falls die Oberflächennormale um einige Grad von der Netzebenenorientierung abweicht, kommt es zur Ausbildung von Stufen. Man spricht in diesem Zusammenhang von fehlorientierten Wafern. Das Stufenwachstum kommt also ohne zusätzliche Nukleationen auf der Terrasse aus, die als typischen Defekt Zwillingsbildung hervorrufen können. Eine Nukleation auf der Terrasse birgt bei SiC die Gefahr in sich, daß es zu einem Polytypwechsel kommt. Für die Homoepitaxie von hexagonalen SiC-Polytypen auf der (0001) - Fläche werden die Wafer so präpariert, daß die Oberfläche 2...5° fehlorientiert ist [Kim93]. Die Oberfläche wird entweder in $[1\bar{1}00]$ oder $[11\bar{2}0]$ Richtung geneigt.

Als Heteroepitaxie bezeichnet man das Aufwachsen eines kristallinen Stoffes auf einer anderen einkristallinen Substanz, z.B. SiC auf Si. Die technologische Beherrschung dieses Epitaxieprozesses ist prinzipiell schwieriger als die Homoepitaxie. Bei der Heteroepitaxie

müssen zusätzlich Wachstumsparameter wie Oberflächenspannung, elastische Verspannungen aufgrund unterschiedlicher Gitterkonstanten und thermische Ausdehnungskoeffizienten berücksichtigt werden (Abb. 2.2.1).

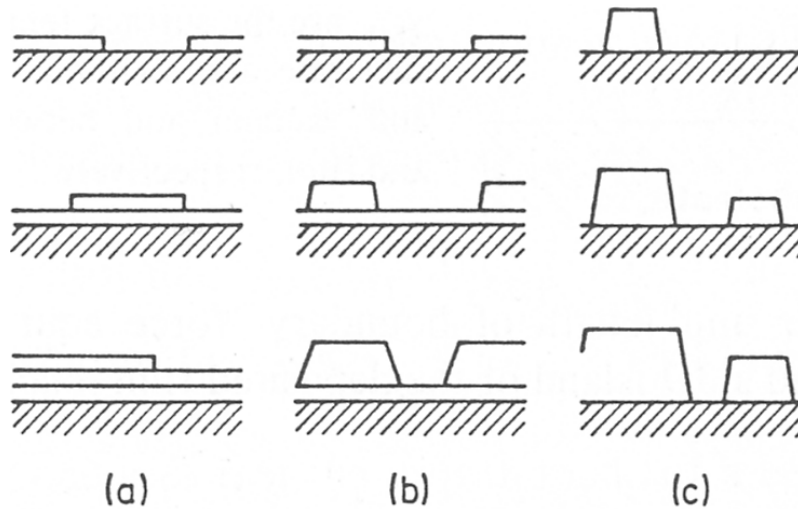


Abb. 2.2.1: Schematische Darstellung der drei wichtigsten Wachstumsmoden in Abhängigkeit von der Bedeckung: a) 2D-Wachstum (Frank-van-der-Merve), b) 3D auf 2D-Wachstum (Stranski-Krastanov), c) 3D-Wachstum (Volmer –Weber)

Ist die spezifische freie Oberflächenenergie des Substrates B größer als die des abgeschiedenen Films A, so benetzt die aufgebraute Schicht A das Substrat. Es tritt glattes, lagenweises Wachstum auf. Dies bezeichnet man auch als *Frank-van der Merve Wachstum*.

Der genau entgegengesetzte Fall tritt ein, falls die Oberflächenenergie des abgeschiedenen Films A größer ist als die des Substrates B, so benetzt die Schicht A das Substrat nicht. Das Material A versucht die Kontaktoberfläche zu Material B also zu minimieren und bildet 3D-Inseln aus. Dieses Wachstum bezeichnet man als *Volmer-Weber Wachstum*. Neben der Oberflächenenergie hängt der Wachstumsmodus auch noch von der relativen Gitterfehlpassung ab. Beim epitaktischen Wachstum wird dem wachsenden Film zunächst die Gitterkonstante des Substrates aufgeprägt, was zu einer Verspannung des Gitters im Epitaxiefilm führt. Bei kleinem Misfit bildet sich ein 2D-Versetzungsnetzwerk an der Phasengrenze aus. Je dicker der abgeschiedene Film ist, desto mehr Verspannungsenergie wird akkumuliert. Ab einer bestimmten kritischen Dicke, ist der glatte Film energetisch ungünstiger und es erfolgt ein Übergang zum Inselwachstum. Dieser Wachstumsmodus wird mit *Stranski-Krastanov Wachstum* bezeichnet. Bei der Heteroepitaxie von Si/SiC liegt das Misfit bei rund 20 %. Eine eigentliche Heteroepitaxie ist nur bis maximal 15 % Misfit möglich. Aus diesem Grund wächst SiC auf Si im 3D-Modus. Das 2D-Wachstum kann nur durch Erzeugen eines rela-

xierten Pseudosubstrates ermöglicht werden. Der dafür technologisch notwendige Prozeßschritt, die Karbonisierung, wird in dem späteren Abschnitt 2.3 noch ausführlich erläutert.

Die wichtigsten technologischen Epitaxieverfahren sollen im folgenden Teil dieses Abschnittes kurz erläutert werden. Für die Realisierung von qualitativ hochwertigen Epitaxieschichten in der Industrie wird in erster Linie die chemische Abscheidung aus der Gasphase eingesetzt. In der Literatur wird der Begriff 'Chemische Dampfphasenabscheidung' bzw. CVD als Sammelbegriff für die Gasphasen- und Dampfphasenabscheidung verwendet. Strenggenommen ist der Begriff nur dann gültig, wenn mindestens eine der Komponenten des Reaktionsgemisches in der Nähe seiner Verflüssigung ist, d.h. einen Gleichgewichtsdampfdruck ausbildet. Es soll hier in Anlehnung an den üblichen Sprachgebrauch kein Unterschied zwischen beiden Begriffen hinsichtlich ihrer Verwendung gemacht werden.

Unter CVD-Bedingungen laufen eine Vielzahl von Teilprozessen ab [Mor90, Arn82]:

- (1) Transport der Reaktanden in die Nähe des Substrates,
- (2) Diffusion zur Oberfläche durch eine thermisch und strömungstechnisch bedingte Grenzschicht,
- (3) Adsorption ,
- (4) chemische Reaktion ,
- (5) Oberflächendiffusion und Einbau,
- (6) Desorption der Reaktionsprodukte,
- (7) Diffusion der Produkte vom Substrat weg und schließlich
- (8) Abtransport der Produkte.

Jeder dieser Teilprozesse kann begrenzend auf das Schichtwachstum wirken. Die Schwierigkeiten bei der SiC-CVD liegen in der technologischen Beherrschung der hohen Abscheidetemperaturen, die zwischen 1400 - 1800°C liegen [Rot94, Mat00]. Für die SiC-Leistungselektronik werden Epitaxieschichten von mehr als 40 µm Dicke benötigt [Rup98]. Da die Abscheideraten selbst bei den obengenannten Prozeßtemperaturen nur in der Größenordnung von 3 - 5 µm/h liegen sind Hochtemperatur-CVD (HTCVD) Anlagen entwickelt worden, in denen bis zu 500 µm/h abgescheiden werden können [Kor98]. Die Temperaturen dieser HTCVD-Systeme liegen im Bereich zwischen 2000°C – 2300°C.

Für genauere Untersuchungen, insbesondere zur Wachstumsmodellierung der Initialstadien der SiC-Bildung, sind PVD (Physical Vapour Deposition)- Techniken geeigneter. Das am weitesten voranentwickelte PVD-Verfahren, mit einer stabil einzustellenden kleinen Si- bzw. C-Rate für die SiC-Epitaxie, ist die Molekularstrahl-Epitaxie (MBE). Die charakteristische Eigenschaft aller MBE-Methoden ist, daß der Massentransport zur Substratoberfläche in

Form eines Molekularstrahles unter UHV-Bedingungen erfolgt. Der geringe Hintergrunddruck ($<10^{-8}$ Pa) in der MBE bewirkt, daß die Bildungszeit einer Monolage aus dem Restgas bei >10 h liegt. In der Abb. 2.2.2 wird der Zusammenhang zwischen der Monolagenbildungszeit, dem Druck in der Prozeßkammer und der mittleren freien Weglänge dargestellt. Es wird deutlich, daß selbst im Ultrahochvakuum, also bei kleiner Restgasmoleküldichte, die Probenoberfläche ständig von einer großen Anzahl von Molekülen getroffen wird. Insbesondere bei kleinen Wachstumsraten, dh. kleinen Abscheideraten, ist das UHV für die Abscheidung von chemisch reinen Schichten notwendig.

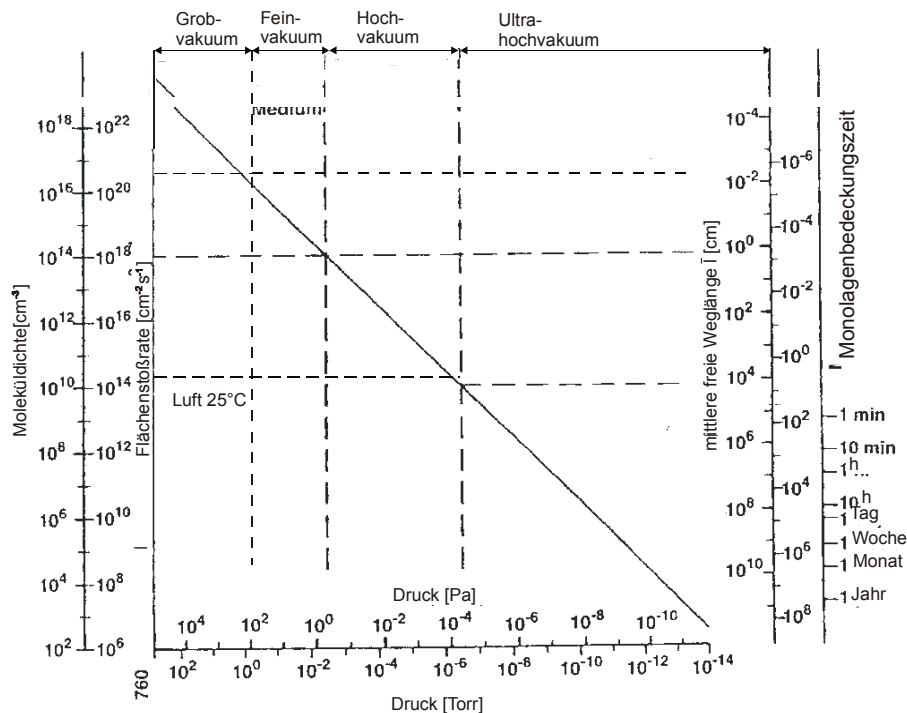


Abb. 2.2.2: Beziehungen verschiedener, das Vakuum beschreibender, Größen [Sch98]

Der Einbau von störenden Fremdatomen ist damit bei der Epitaxie stark reduziert. Die mittlere freie Weglänge im UHV unter den Wachstumsbedingungen liegt im 10^6 m - Bereich. Das heißt die Teilchen auf dem Weg von der Quelle zur Substratoberfläche erfahren untereinander und mit dem Restgas keine Wechselwirkung. Die Art und Weise des Angebotes, der für das Schichtwachstum notwendigen Komponenten für die Epitaxie, läßt eine grobe Klassifizierung der MBE-Varianten zu. Werden die zum Schichtwachstum nötigen Komponenten als

reine Elemente zur Substratoberfläche transportiert, so spricht man von der Physical Deposition Technique (PDT).

Die für fast alle Elemente einsetzbare Elemental Source MBE, (ESMBE) ist ein typischer Vertreter der PDT. Die Verbindungen, die abgeschieden werden sollen, oder die daraus bestehenden Elemente aus denen sich die Verbindung zusammensetzt, werden aus kristallinem oder amorphem Quellenmaterial durch hohe Temperaturen verdampft und zur Probe transportiert. Das Material wird typischerweise mit einer Knudsenzelle oder mit einem Elektronenstrahlverdampfer zu einem elementaren Teilchenstrahl formiert. Das Quellenmaterial wird dabei beim Verdampfungsprozeß nicht verändert und geht nur beim Einbau in die Epitaxieschicht eine chemische Reaktion ein. Die Thermodynamik, Konzentration und Temperatur bestimmt, welche Phase abgeschieden wird. Das Kristallwachstum ist nicht durch die Kinetik von Sekundärreaktionen eingeschränkt. Die technisch stabil realisierbaren kleinen Wachstumsraten in der ESMBE von ca. 1 nm pro Minute und ein Hintergrunddruck von rund 10^{-8} Pa bewirken, daß die mittlere freie Weglänge der Atome auf dem Substrat vom Zeitpunkt des Auftreffens bis zur Kollision mit einem Fremdatom bzw. einem anderen Reaktanden auf der Oberfläche gegenüber den CVD-Bedingungen deutlich erhöht ist. Damit können die Wachstumstemperaturen deutlich abgesenkt werden. Bei den Experimenten ist es gelungen, qualitativ hochwertige 3C-SiC-Schichten bei 660°C im nm Bereich zu erzeugen [Att99]. Prinzipiell bedeuten niedrige Wachstumstemperaturen für die Epitaxie von dotierten Schichten, daß eine Diffusion von Dotanten an den Phasengrenzen innerhalb eines Schichtsystems unterdrückt wird und schärfere Übergänge bei der Dotierung möglich sind. Bei geringen lateralen und horizontalen Abmessungen des Bauelementes (z.B. Quantenbauelementen) ist dies daher zwingend notwendig.

Im Gegensatz dazu beinhalten die Teilchen bei der Chemical Deposition Technique (CDT) die Schichtkomponenten nur als Teil einer Verbindung. Bei der CDT vollziehen die Moleküle, bzw. Molekülbruchstücke, die Komponenten der Schicht enthalten, chemische Reaktionen an der Substratoberfläche, bevor es zu einem Schichtwachstum kommen kann. Die Gasquellen MBE (Gas Source MBE, GSMBE) gehört zu den CDT's. Je nach Auswahl der gasförmigen Verbindung und je nach Temperatur des Substrates, treten sehr unterschiedliche Reaktionen auf der Substratoberfläche auf. Bei einer für die thermische Dissoziation der Moleküle zu niedrigen Substattemperaturen können die Gasmoleküle bereits im Gasinjektor thermisch in kleinere Bruchstücke zerlegt werden. Neben eines angebotskontrollierten Wachstums wie bei ESMBE, existiert bei der GSMBE der Effekt der Begrenzung durch Sekundärreaktionen, wie Dissoziation und den Reaktionen der Molekülbruchstücke mit der

Festkörperoberfläche. Die Kinetik bei der Dissoziation verschiedener Precursor kann die Wachstumsrate beträchtlich beeinflussen und andere Temperaturabhängigkeiten aufzeigen. Für die SiC-Epitaxie werden fast ausschließlich Kohlenwasserstoffverbindungen und Siliziumwasserstoffverbindungen als Precursor eingesetzt. Für die SiC-Abscheidung werden typischerweise Temperaturen oberhalb von 1000°C verwendet. Da sich eine wasserstofftermi- nierte Si-Oberfläche nur unterhalb von 400°C einstellen kann, ergibt sich zusammen mit dem geringen Arbeitsdruck die Konsequenz, daß der Einfluß des Wasserstoffs auf die Epitaxie im Gegensatz zur CVD stark zurückgedrängt wird. Da mittlerweile eine größere Anzahl von Mo- difizierungen der CVD existieren, ist es angebracht, die Besonderheiten der GSMBE genauer zu definieren. In [Pan93] findet sich folgende Abgrenzung:

Bei der CVD bildet sich in der Nähe der Substratoberfläche eine Grenzschicht in dem Strömungssystem, bedingt durch Reibung an der Oberfläche. Die Reaktionsprodukte müssen durch diese Grenzschicht zur Festkörperoberfläche diffundieren und bilden dort nach Reakti- on die Epitaxieschicht aus. Diese Strömungsverhältnisse sind bei der GSMBE grundlegend anders. Der Antransport ist in diesem Fall nur durch die geometrische Anordnung der Quel- len bestimmt. Die mittlere freie Weglänge der Gasteilchen ist in diesem Fall größer als der Abstand zwischen Quelle und Substrat, sie liegt im 10^6 m Bereich. Eine begrenzende Gas- schicht existiert für den Teilchenfluß aus der Quelle nicht. Die Moleküle können auf direktem Weg das Substrat erreichen.

Für die experimentellen Untersuchungen bietet die ESMBE gegenüber der GSMBE entscheidende Vorteile. Der thermisch bedingte Zerfall von Molekülen bedeutet eine Ein- schränkung der Untersuchung der Epitaxie in dem unteren Temperaturbereich. Desweiteren kann mit der ESMBE eine präzisere Steuerung des Materialangebotes vorgenommen werden. Da bei der ESMBE ein wasserstofffreies System vorliegt, bedeutet dies für die Modellierung eine Reduzierung der Wachstumsparameter. Die ESMBE stellt das am wenigsten komplexe System dar. Da hier die Aufklärung der physikalischen Prozesse während des Wachstums im Vordergrund steht, ist damit die ESMBE die geeignete Technik. In dieser Arbeit wird eine spezielle Variante der ESMBE, die SSMBE, eingesetzt.

2.3 Karbonisierung

Das Element Silizium des Substrates ist eine Komponente in der aufwachsenden SiC- Schicht. Um eine Beteiligung des Substrates an der Reaktion zu verhindern, ist zwischen Schicht und Substrat eine Diffusionsbarriere notwendig. Um die Initialwachstumsstadien des

SiC zu verbessern und um eine Diffusionsbarriere aufzubauen wird vor der eigentlichen SiC-Epitaxie ein Karbonisierungsprozeß durchgeführt.

Die Karbonisierung kann allgemein als eine chemische Reaktion eines Materials mit Kohlenstoff beschrieben werden. Durch die Reaktion des Kohlenstoffs mit dem Silizium entsteht eine SiC-Schicht. Im folgenden wird die Karbonisierung einschränkend nur im Zusammenhang mit der Wechselwirkung von Silizium mit Kohlenstoff betrachtet. Im Idealfall wird mit dem Karbonisierungsprozeß eine dünne SiC-Schicht von wenigen Nanometern erzeugt. Diese Schicht dient dann als Pseudosubstrat für die anschließende SiC-Epitaxie. Hieraus resultieren gleich mehrere Anforderungen an den Karbonisierungsprozeß:

- (1) Die Karbonisierungsschicht muß einkristallin sein, weil sich alle Kristalldefekte in der sich anschließenden SiC-Epitaxie fortsetzen.
- (2) Die Schicht ist nur wirksam wenn sie geschlossen ist. Für die Einhaltung der Stöchiometrie bei der SiC-Epitaxie wird eine Diffusionsbarriere zum Si-Substrat benötigt. Die Diffusion von Silizium wird durch Korngrenzen und durch Strukturdefekte in der Karbonisierungsschicht begünstigt. Die morphologischen Eigenschaften der Phasengrenze sind wesentlich für die Diffusionsprozesse zwischen der Si- und der SiC-Schicht [Cim98a].
- (3) Der Karbonisierungsprozeß muß relativ schnell zu einer geschlossenen SiC-Schicht führen. Sowohl bei der CVD [Li95, Sch97] als auch bei der MBE [Yos92] führt der Karbonisierungsprozess an der Phasengrenzfläche SiC/Si zur Löcherausbildung. Bei der lateralen Ausbildung entsprechend großer Löcher besteht die Gefahr des Abblätterns der SiC-Schicht.

Entsprechend der Bedeutung des technologischen Zwischenschrittes der Karbonisierung vor der eigentlichen SiC-Epitaxie sind in der Literatur umfangreiche Untersuchungen vorhanden. Nach der Art der Kohlenstoffquelle lassen sich die Karbonisierungsverfahren klassifizieren (Abb. 2.3.1). Der Kohlenstoff kann aus der Gasphase in reiner oder gebundener Form angeboten werden. Als Quelle für reinen Kohlenstoff wurden folgende Verfahren verwendet: 1) Sublimation von Graphit im Hochvakuum [Dur81],

2) Verdampfen von Fullerenen [Hen96], [Hu96], [Hen95], [Che95],

3) Laserablation von Graphittargets [Rim95].

In der SSMBE findet der Wachstumsprozeß bei geringen Abscheidetemperaturen (bis zu 650°C [Zek95]), d.h. wesentlich niedriger als bei der CVD, statt.

Bei der Reaktion mit gasförmigen Kohlenstoffverbindungen werden vorwiegend Kohlenwasserstoffe benutzt. Die Karbonisierung ist im Trägergas oder in der reinen Kohlenwasserstoffatmosphäre möglich. Meistens wird Wasserstoff als Trägergas verwendet. Andere Trägergase sind Argon [Rai69] und Helium [Bal80]. Unter reduzierten Drücken wurden mit der Niedrigdruck-CVD (LPCVD) Ethin [Hir92], Ethen [Sch95] und Propan [Tin95] zwischen 0,1 – 100 Torr bei Temperaturen über 1000°C benutzt. Für die Karbonisierung unter Normaldruck mit der CVD (NPCVD) wurde in erster Linie Propan eingesetzt [Mat81]. Die RTPCVD, eine Technologie mit der hohe Aufheiz- bzw. Abkühlgeschwindigkeiten realisiert werden können, wurde in [Cim98] ausgiebig zur Untersuchung der Karbonisierung eingesetzt. Die Morphologie der SiC-Schichten wurde in erster Linie mit dem AFM und dem Ellipsometer *ex situ* untersucht. Bei diesen Untersuchungen zeigte sich, daß die Qualität der Phasengrenzfläche zwischen dem Si-Substrat und der dünnen SiC-Schicht die nachfolgende SiC-Epitaxie wesentlich beeinflusst. Unter RTPCVD-Bedingungen ist es gelungen, den Karbonisierungsprozeß so zu optimieren, daß eine glatte, zusammenhängende und einkristalline dünne SiC-Schicht gebildet wird [Cim98]. Eine *in situ* Untersuchung der Initialstadien der Karbonisierung steht damit aber noch aus. Bei der ESMBE könnte diese Untersuchung dazu beitragen, daß die Karbonisierung ähnlich gute SiC-Pufferschichten wie in der RTPCVD liefert. Bei der ESMBE führte die Ausdiffusion des Siliziums durch ausgeprägte Defekte an den SiC-Korngrenzen zu einer Löcherbildung im Si und damit zu einer Unterhöhlung der SiC-Schicht. Eine Berührung der sich vergrößernden Löcher während der Karbonisierung führte im Extremfall zu einem Abheben der SiC-Schicht [Cim98].

Das Ziel dieser Arbeit ist es zum Verständnis der ablaufenden Oberflächentransformationen während der Karbonisierung unter ESMBE-Bedingungen, hinsichtlich einer Modellierung der Initialstadien der SiC-Bildung und einer Wachstumsparameterermittlung, beizutragen.

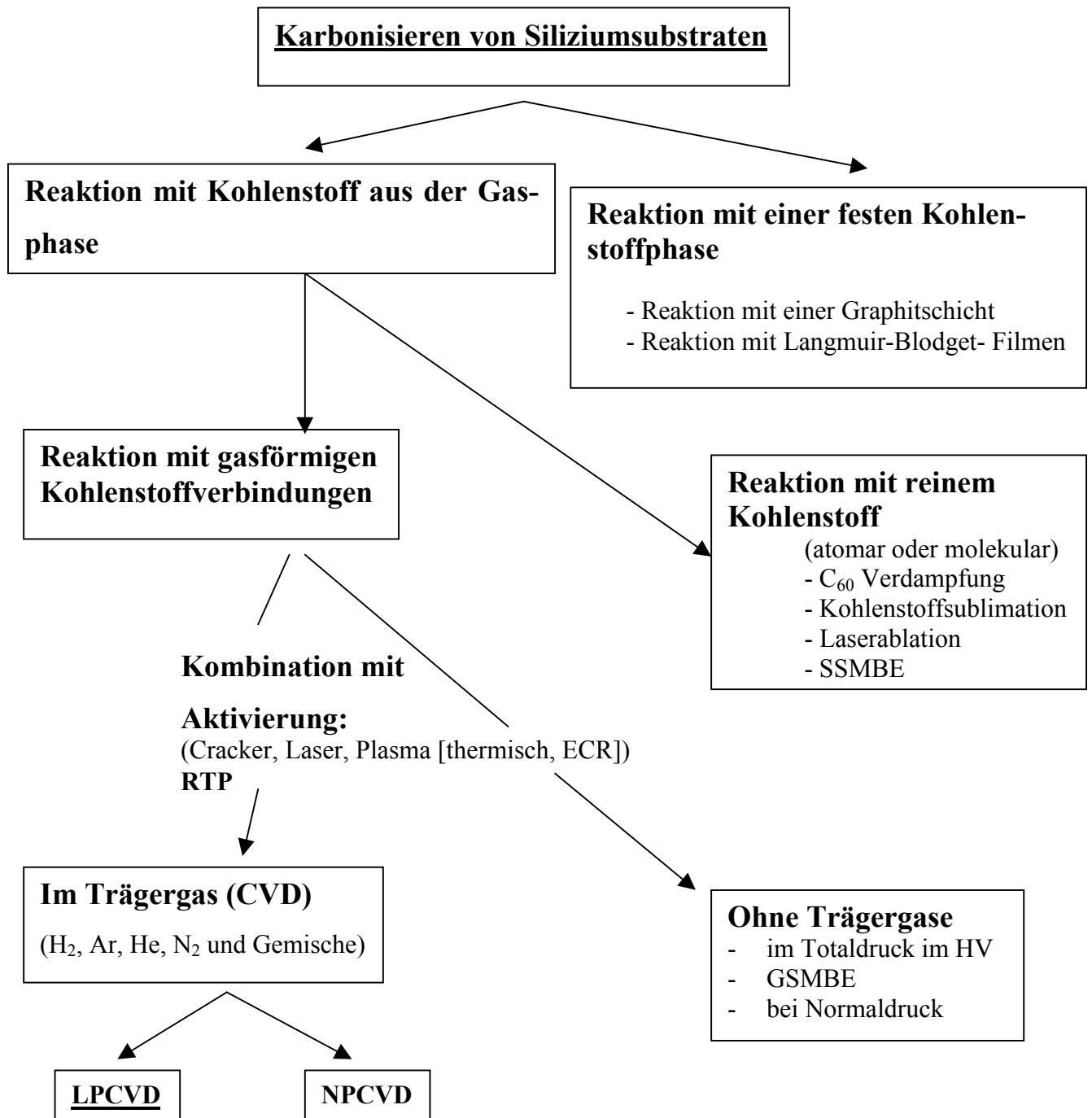


Abb. 2.3.1: Klassifizierung der Karbonisierungsverfahren [Cim98a].

2.4 Heteroepitaxie von SiC auf Si

Da keine kostengünstigen SiC-Substrate zur Verfügung stehen, ist die Herstellung von SiC-Bauelementen, trotz der teilweise hervorragenden Materialeigenschaften (Kap.1), stark eingeschränkt. Eine mögliche Alternative besteht in der Heteroepitaxie von SiC auf Si. Gegenüber anderen Substraten wie z.B. Al_2O_3 [Rai69], AlN [Rut74] und TiC [Par85] bietet Silizium den Vorteil, daß es in großflächigen Wafern (200 mm Durchmesser) mit sehr guter kristalliner Qualität preisgünstig erhältlich ist. Desweiteren bietet die Heteroepitaxie von SiC auf Si den Vorteil der Kompatibilität zur Si-Technologie. Daher ist das Heterosystem Si/SiC trotz der ihm innewohnenden Schwierigkeiten technologisch auch weiterhin von großem Interesse. Auf Silizium wächst überwiegend nur das kubische 3C-SiC, welches ein metastabiler Polytyp ist. Die Einkristallzucht von 3C-SiC ist nur unter starken Nichtgleichgewichtsbedingungen möglich [Jay96]. Damit können Hochtemperaturschritte, wie die Ausheilung von Implantdefekten, zu einer Phasenumwandlung zu 6H-SiC führen. Den Nachteilen in der Präparation stehen einige hervorragende Materialeigenschaften gegenüber. In Kap.1 ist aus dem Vergleich der SiC-Polytype zu erkennen, daß das 3C-SiC hinsichtlich der Elektronenbeweglichkeit den besten Wert aufweist. Aufgrund der Kristallsymmetrie weist der kubische Polytyp keine Anisotropie auf, was für die Bauelementherstellung von Vorteil ist. Derzeit sind keine 3C-SiC-Wafer kommerziell erhältlich. Die Abscheidung von einkristallinem 3C-SiC auf Si ist gleich für mehrere Anwendungsgebiete interessant:

- (1) Der Heteroübergang Si-SiC kann als funktioneller Bestandteil in einem elektronischen Bauelement (z.B. Hetero-pn-Diode [Sug86], HBT [Sug89]) genutzt werden. Bei anderen möglichen isolierenden Substraten für die SiC-Heteroepitaxie, wie z.B. Saphir oder Quarz ist dies nicht möglich.
- (2) Für die Mikromechanik und für die Sensorik ist SiC wegen der Materialeigenschaften ein interessantes Halbleitermaterial (Kap.1). Die Kompatibilität zur Mikroelektronik eröffnet mit dem Si - SiC Schichtsystem interessante Anwendungen. Die ausgefeilte Si-Halbleitertechnologie könnte in diesem Zusammenhang weiterhin für die Steuerung und Datenauswertung in der Mikrosystemtechnik genutzt werden.
- (3) In der Optoelektronik hat GaN als direkter Halbleiter mit einem Bandabstand von 3,2 eV eine größere Bedeutung erlangt [Nak97, Akt96]. Derzeit existieren keine GaN-Wafer auf dem Halbleitermarkt. Das Schichtsystem SiC-Si kann hier als ein Pseudosubstrat eingesetzt werden [Dev 98].

- (4) Die Verwendung als Pseudosubstrat für die Diamantabscheidung ist ebenfalls ein interessanter Anwendungsfall, da es auch hier kein entsprechendes Bulkmaterial gibt [Gut96].
- (5) Die Initialstadien der SiC-Bildung in dem oberflächennahen Bereich des Si-Wafers ermöglichen die Herstellung von selbstskalierenden SiC-Nanostrukturen [Sch00], die auf lithographischem Wege nicht herzustellen sind. Da hier ein Breitbandhalbleiter mit 2,3 eV in Si mit einem Bandabstand von 1,1 eV eingebettet ist, ergeben sich damit prinzipiell interessante elektrische Eigenschaften.

Die Herstellung von SiC-Schichten mit einer ausreichenden Qualität für die obigen Anwendungen wird durch einige Besonderheiten beim Wachstum erschwert. Hier wäre zum einen die Fehlpassung in den Gitterkonstanten von 20 % und zum anderen der Unterschied in den thermischen Ausdehnungskoeffizienten von 8 % zu nennen. Allein aus diesen beiden unterschiedlichen Materialeigenschaften zwischen Si und SiC resultiert eine fehlangepasste Grenzfläche, die zur Defektgenerierung in der aufwachsenden SiC-Schicht führt. Es kommt zu einer Verschlechterung der elektronischen Transporteigenschaften der SiC-Schicht. Die Verspannungen in der SiC-Schicht sind auch bei Schichtdicken von mehreren μm noch zu beobachten. Durch den Abkühlvorgang nach der Abscheidung vergrößert sich die Verspannung zwischen der SiC-Epitaxieschicht und dem Substrat [Sla75]. Bei dickeren Schichten ($>5 \mu\text{m}$) führten die Verspannungen bis zum Bruch des Substrates.

3 Molekularstrahlepitaxie

3.1 Reinigung der Si -Oberflächen

Die Karbonisierung bzw. die Heteroepitaxie von SiC auf Si setzt eine Reinigung der Si-Wafer voraus. Es müssen Verunreinigungen wie Kohlenwasserstoffe und die Siliziumoxidschicht, die sich auf den Wafern immer bei Anwesenheit von Luft bildet, entfernt werden. Nur wenn die amorphe Oxidschicht vollständig entfernt wird, kann ein definierter Karbonisierungsprozeß durchgeführt werden. Für die Reinigung der Wafer ist ein spezielles Niedrigenergie – Wasserstoff - Plasma verwendet worden. Dieses Plasma-Verfahren ist von der Firma Balzers entwickelt worden [Ram93]. Das Prinzip der Niedrigenergie-Wasserstoff-Plasma-Reinigung soll im folgenden kurz skizziert werden (Abb. 3.1.1).

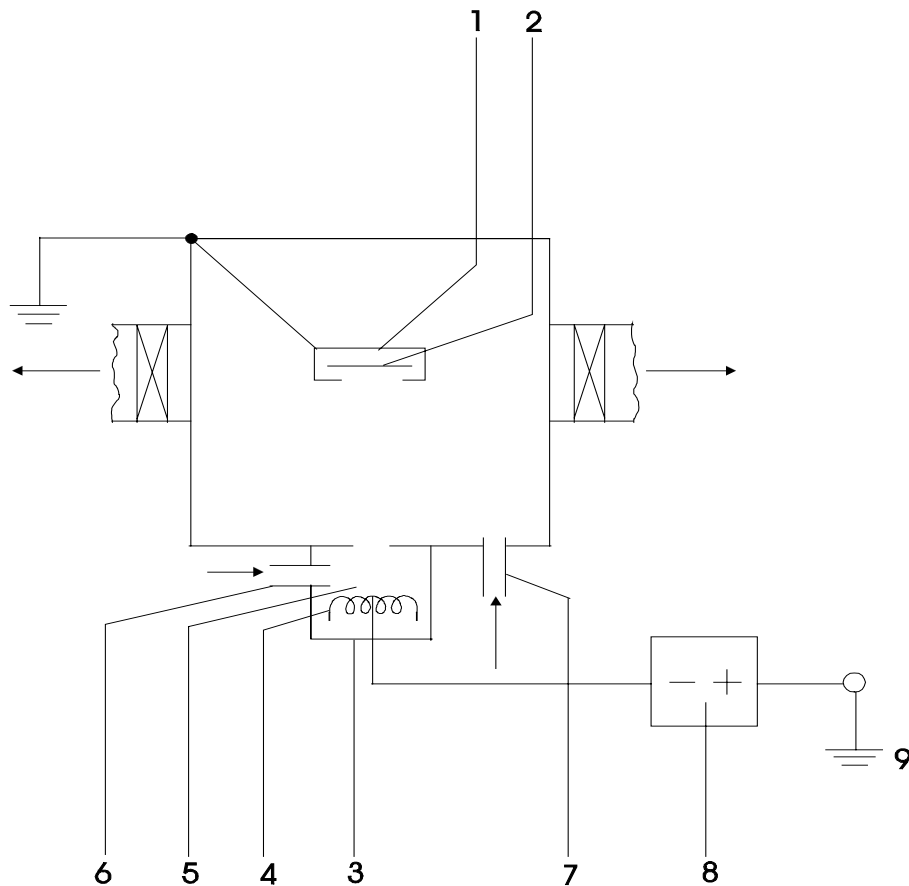


Abb. 3.1.1: Prinzipskizze eines Niedrigenergie-Wasserstoff-Plasma – Reinigungsmoduls in UHV-Konfiguration [Ram93]. (1) Substrathalter, (2) Si-Wafer, (3) Plasmaquelle, (4) beheiztes Filament, (5) Kammer, (6) einströmendes Argon, (7) einströmender Wasserstoff, (8) Hochspannungsquelle, (9) Masseanschluß

Die Silizium-Wafer (2) werden, so wie sie vom Hersteller angeliefert werden, in das Reinigungsmodul gegeben. Der Substrathalter (1) und die Reinigungskammer sind geerdet. Eine gesonderte Heizung für das Substrat existiert nicht. Die Plasmaquelle (3) besteht aus einem beheizten Filament (4) in einer separaten kleineren Kammer (5), die eine Öffnung zu der Reinigungskammer besitzt. Ein Arbeitsgas, vornehmlich Argon, wird in die kleine Kammer am Filament vorbeigeleitet (6). Das Reaktionsgas (Wasserstoff für die Reinigung) wird direkt in die Hauptkammer gegeben (7). Sowohl der Wasserstoff als auch das Argon gehören zur Reinheitsklasse 6.0. Die Gasentladung wird über ein Potential (8) zwischen dem Filament (4) und Masse (9) realisiert. Bei einer Spannung von üblicherweise 30 V fließt ein Entladungsstrom von bis zu 40 A. Der gesamte Substrathalter ist von einem Plasma umgeben, so daß nach einer Reinigungszeit von einigen Minuten der Wafer gereinigt ist. Der Wafer wird während der Reinigungsprozedur nicht durch einen speziellen Heizer aufgeheizt. Durch die Wechselwirkung mit dem Plasma heizt sich der Wafer aber während der 15 minütigen Reinigungsprozedur auf 150 - 180°C auf. Der Basisdruck in dem verwendeten UHV-Plasmodul ist $< 10^{-8}$ hPa. Durch Einleiten von 20 sccm Wasserstoff ($1\text{sccm} = 1\text{ cm}^3$ unter Standardbedingungen) und 1353 sccm Argon wird ein Arbeitsdruck von $5 \cdot 10^{-3}$ hPa eingestellt.

Die Vorteile bei diesem Verfahren liegen auf der Hand. Es ist kein Hochtemperatur Desorptionsprozeß für die Entfernung des Siliziumoxids notwendig. Die Plasmaquelle arbeitet bei 30 V in Kombination mit einem großen Elektronenstrom. Durch die geringe kinetische Energie der erzeugten Ionen werden Sputterprozesse an dem Substrat und an der Kammerwand vermieden. Die hohe Elektronendichte in dem Plasma bietet noch einen anderen Vorteil. Die Entfernung der Oxidschicht wird durch eine elektronenstimulierte Reaktion des Wasserstoffs erleichtert. Die Qualität der Reinigung der Si-Oberfläche wurde durch Si-Homoepitaxie in der Literatur verifiziert. Auf der Si(100)-Oberfläche konnte bei 300°C und auf der Si(111)-Oberfläche bei 400°C Si-Epitaxieschichten hoher Perfektion erzeugt werden [Ram93].

Der für die Wasserstoffdesorption wichtige Annealingschritt wurde in der MBE-Hauptkammer durchgeführt. Bei einer Temperatur von 780°C und einer Stunde Dauer ist man weit über der minimalen Desorptionstemperatur für Wasserstoff von 400°C. Der Temperaturschritt ist auch für das Ausheilen der durch den Plasmaprozeß entstandenen Defekte wichtig. Mit der UHV-Konfiguration des Plasmoduls gestaltet sich der Transferprozeß des Wafers in die MBE mit einem Schleusensystem besonders einfach.

3.2 Schichtpräparation

Für die Karbonisierung der Si-Oberflächen wurde eine SSMBE vom Typ UMS 500 M der Fa. Balzers verwendet. In der Abb. 3.2.1 ist eine Schemazeichnung der Anlage wiedergegeben.

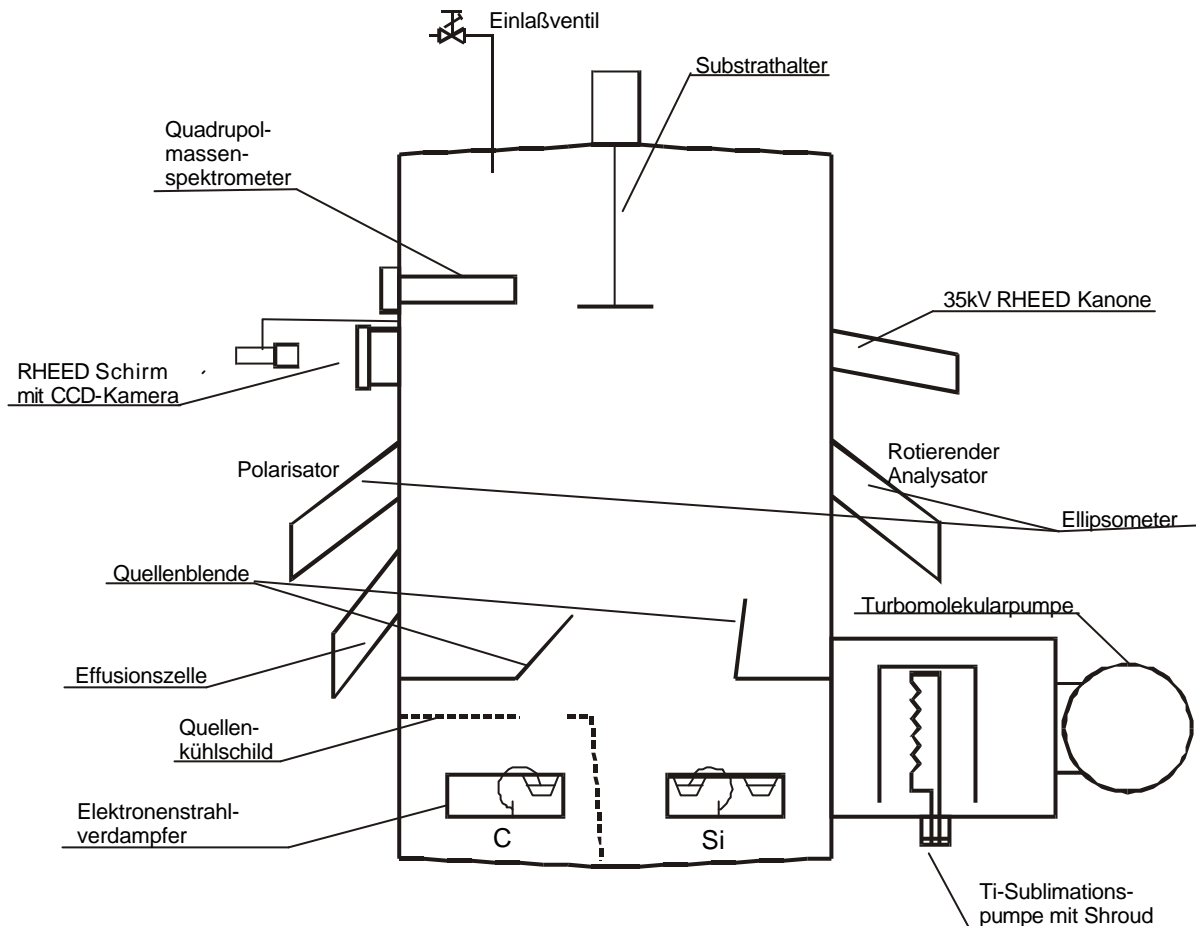


Abb. 3.2.1: Schemazeichnung der verwendeten MBE-Anlage

Die Turbomolekularpumpe liefert einen Enddruck, der unter 10^{-10} hPa liegt. Während der Karbonisierungsexperimente änderte sich dieser Druck auf 10^{-8} hPa. Eine Aktivierung der ebenfalls eingebauten Titan-Sublimationspumpe sorgte dann aber dafür, daß ein Druck von $< 10^{-8}$ hPa auch bei mehrstündigen Prozessen aufrechterhalten werden konnte. Mit dem UHV-Gaseinlaßventil können Prozeßgase in die MBE-Kammer eingelassen werden. Desweiteren ist die SSMBE mit einer Effusionszelle ausgestattet. Das Substrat, Si(100)- bzw. Si(111)-Wafer, wird lose in einem Haltering aus Silizium von einem dreh- und schwenkbarem Substrathalter in der MBE aufgenommen. Dieser Substrathalter verfügt über einen Heizmäander aus hochreinem pyrolytischen Graphit, mit dessen Hilfe der Wafer über eine Strahlungsheizung

von der Rückseite her auf Temperaturen von bis zu 1250°C gebracht werden kann. Die Temperaturmessung erfolgt über ein Thermoelement, das sich auf der Rückseite des Mäanders befindet. Das Signal des Thermoelementes wird zur aktiven Regelung des Heizstromes herangezogen. Die Temperaturkonstanz ist besser als 0,5 K. Eine Eichung der Temperatur wurde mit einem Pyrometer vorgenommen. Mit einem RHEED- und Ellipsometer-System kann die Veränderung der Si-Oberfläche *in situ* beobachtet werden. Das eingebaute Quadrupolmassenspektrometer dient zur Regelung des Materialflusses der Elektronenstrahlverdampfer und zur Restgasanalyse. Im Gegensatz zu Silizium schmilzt Kohlenstoff nicht auf, sondern sublimiert bei Temperaturen $T > 2300$ K. Bei vergleichbarer Verdampferleistung liegt der erzielte Teilchenfluß um ungefähr 2 Größenordnungen niedriger als bei Silizium. Ein weiteres Problem, das beim Verdampfen von Kohlenstoff mittels einer Elektronenkanone auftritt, ist die Tendenz des Kohlenstoffs mehratomige Cluster zu bilden. Das Verhältnis zwischen den Clustern hängt von der Verdampferleistung ab. Das Erfassen des C_3 - Kohlenstoffclusters (Massenzahl 36) für die Quellenregelung hat sich experimentell als günstig herausgestellt. Eine absolute Eichung des Kohlenstoffflusses wurde *ex situ* mit AES und durch gravimetrische Messungen vorgenommen. Zusätzlich wurden ellipsometrisch die SiC-Schichtdicken nach der Karbonisierung des Siliziums ermittelt. Damit ergab sich für die verwendeten Siliziumoberflächen Si(100) und Si(111) folgender Zusammenhang zwischen der relativen Rate am Quadrupol und den Absoluteichungen des Kohlenstoffs (Tab. 3.2.1).

Oberflächenorientierung	relative Rate (Quadrupol)	Kohlenstofffluß [cm ² s ⁻¹]	Monolagen pro Minute [ML/min]
Bezeichnung	R_C	j_C	
Si(111)	0,3	$5,54 \cdot 10^{12}$	0,43
	1	$1,85 \cdot 10^{13}$	1,42
	3	$5,55 \cdot 10^{13}$	4,27
	10	$1,85 \cdot 10^{14}$	14,23
	100	$1,85 \cdot 10^{15}$	142,26
Si(100)	0,3	$5,7 \cdot 10^{12}$	0,50
	1	$1,9 \cdot 10^{13}$	1,68
	3	$5,7 \cdot 10^{13}$	5,04
	10	$1,9 \cdot 10^{14}$	16,8
	100	$1,9 \cdot 10^{15}$	168

Tab. 3.2.1: Zusammenhang zwischen der rel. C-Rate R_C und der Absoluteichung

Bevor der gereinigte Wafer in der MBE dem Kohlenstofffluß ausgesetzt wurde, ist bei geschlossener Quellenblende die C-Quelle auf eine definierte Verdampfungsrate gebracht worden. Hierbei zeigte sich, daß ein stabiler Kohlenstofffluß mit pyrolytischem Graphit besser zu erzielen ist als mit Spektralkohlengraphit in dem Elektronenstrahlverdampfer. Pyrolytischer Graphit enthält im Vergleich zu Spektralkohlengraphit sehr wenig Hohlräume mit Gaseinschlüssen. Nach der C-Quellenstabilisierung werden die auf Prozeßtemperatur gebrachten Substrate dem Kohlenstoffstrom ausgesetzt. Die Veränderungen der Si-Oberfläche sind mit RHEED gut zu detektieren. Die Beugungsbilder auf dem RHEED – Schirm wurden durch eine CCD-Kamera beobachtet und mit einem Videorecorder aufgenommen. Die Veränderung der Intensität der Beugungsreflexe in den jeweiligen RHEED – Bildern wurde für jeden Prozeß mit einer speziellen Auswertesoftware (‘RHEED-Vision’ von Staib) am PC ausgewertet. Nach dem Prozeßablauf wurde die Oberflächen – Morphologie der Schichten mit AFM und ausgewählte Proben mit TEM untersucht.

4 Atomkraftmikroskopie

Das Atomkraftmikroskop (AFM) ist für die *ex situ* Untersuchung von Materialproben gut geeignet. Es ist ein direkt abbildendes Meßverfahren. Damit kann man im Gegensatz zu Oberflächenstrukturuntersuchungen mit Elektronenbeugungsverfahren wie RHEED und LEED ohne aufwendige Simulationen eine Vielzahl von Informationen über die Oberflächenmorphologie gewinnen. Für die experimentelle Handhabbarkeit ist desweiteren hervorzuheben, daß das AFM kein Vakuum für den Meßprozeß benötigt und daher direkt unter atmosphärischen Bedingungen gearbeitet werden kann. Hierbei muß aber beachtet werden, daß es an Luft zu Verunreinigungen und Veränderungen der Oberfläche kommen kann. Bei der Untersuchung von karbonisierten Oberflächen verhindert das sich auf dem Si-Wafer gebildete SiC eine Veränderung der Morphologie und die Ausbildung einer Siliziumoxidschicht. Das Prinzip des AFM's ist in der Abb. 4.1 dargestellt.

In der Prinzipdarstellung Abb. 4.1 für das AFM ist zu erkennen, daß ein miniaturisierter V - förmiger Siliziumarm (Cantilever) mit einer Spitze (Tip) aus Siliziumnitrid über die zu untersuchende Oberfläche geführt wird, indem die Probe mit einem Piezo - Scanner bewegt wird. Zwischen der Probenspitze und dem Substrat bilden sich eine van der Waalsche-Bindung aus. In Abhängigkeit von der Morphologie der Substratoberfläche verbiegt sich nun dieser Cantilever. Ein Laserstrahl, der auf den Cantilever trifft, verändert dadurch seinen Reflexionswinkel. Der reflektierte Laserstrahl wird über einen Spiegel auf einen 4 – Quadranten - Photodetektor geleitet. Eine Veränderung des Reflexionswinkels des Laserstrahls bedeutet, daß der 4 – Quadranten - Photodetektor ein anderes Lichtintensitätsverhältnis für die 4 Photodioden detektiert. Diese Änderung der Photoströme kann elektrisch leicht ausgewertet werden und für eine Höhenansteuerung (z - Richtung) des Piezos verwendet werden. Die Spannungsregelung des Piezos ist so ausgelegt, daß die Abrasterung der Substratoberfläche nach einem vorgegebenem Muster realisiert wird und gleichzeitig die Verbiegung des Cantilevers auf einen bestimmten Wert gehalten wird.

Diese als Konstante an dem Gerät einzustellende Verbiegung bedeutet einen konstanten Abstand, in der Größenordnung der Wechselwirkung der van der Waalschen Kräfte, zu der Oberfläche des Substrates. Aus dieser ständigen Höhenanpassung des Piezoscanners und der realisierten x – y - Bewegung in der Ebene kann mit einer Auswertesoftware die Morphologie des Substrates ermittelt werden. Die Meßwerte können wahlweise in Falschfarben mit max. 256 Farbstufungen oder in perspektivischen 3D-Bildern dargestellt werden.

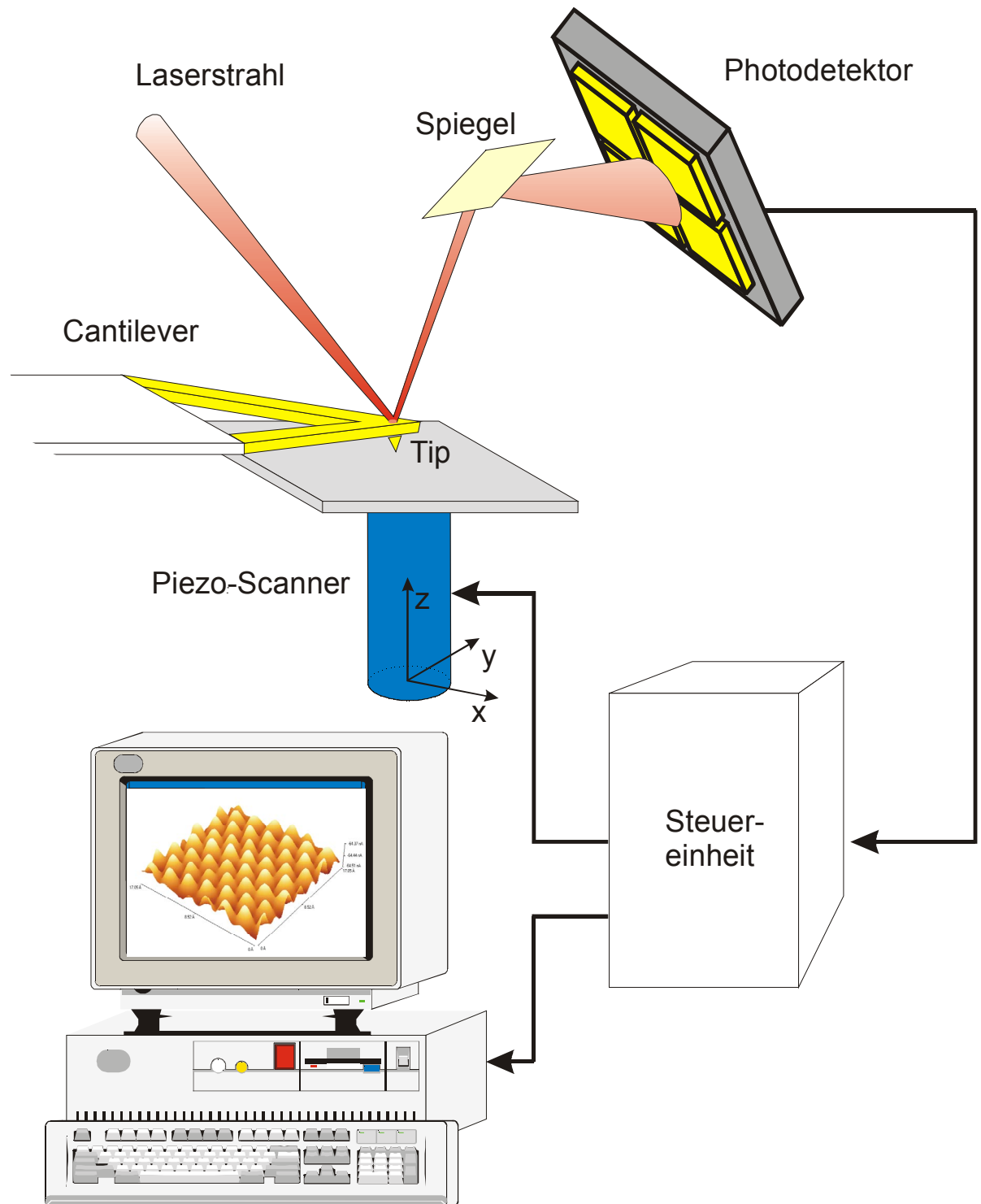


Abb. 4.1: Prinzipdarstellung des Atomkraftmikroskops

5 Elektronenbeugung im streifenden Einfall

5.1 Entstehung des Beugungsbildes bei RHEED

Für die *in situ* Beobachtung der Si-Oberflächenveränderungen während der Karbonisierung in der MBE wurde die Elektronenbeugung im streifenden Strahleinfall (RHEED) angewendet. Diese Methode eignet sich aufgrund der geometrischen Anordnung besonders gut für die Prozeßkontrolle. Der Materialtransport zur Probenoberfläche wird bei diesem Meßsystem nicht behindert. Der Aufbau eines RHEED - Meßsystems ist in der unteren Abb. 5.1.1 dargestellt.

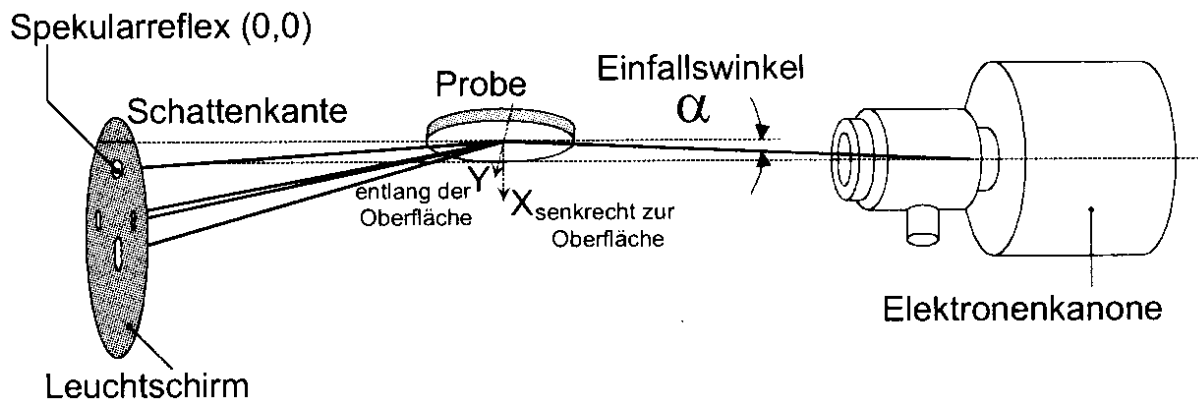


Abb. 5.1.1: Prinzipskizze des RHEED - Systems

Ein Elektronenstrahl aus der Elektronenkanone fällt unter einem Winkel α , typischerweise zwischen $0,5^\circ$ und 5° [Mül94], auf die Probenoberfläche und wird gebeugt. Die Primärenergie der Elektronen aus der Elektronenkanone variiert je nach Hersteller zwischen 10 und 100 keV [Lüt97]. Das Beugungsbild wird auf einem Fluoreszenzschirm detektiert. Die Linie am Leuchtschirm, oberhalb der aufgrund der geometrischen Anordnung der Probe kein Beugungsreflex mehr beobachtet werden kann, bezeichnet man als Schattenkante. Aus der Anordnung der Reflexe auf dem Schirm lassen sich Aussagen über die Morphologie und die kristalline Struktur des oberflächennahen Bereiches treffen. Durch zeitabhängige Untersuchungen ist es möglich, den Wachstumsprozeß der Epitaxieschichten zu analysieren und zu

regeln. Mit dem RHEED-System wird die Veränderungen der Oberflächenrekonstruktionen und die Initialstadien der SiC-Bildung während der Karbonisierung beobachtet.

Das Entstehen des RHEED - Beugungsbildes kann man am einfachsten aus der 3D - Beugung im reziproken Gitter ableiten. Das real existierende Gitter wird mit drei Basistranslationsvektoren \underline{a}_1 , \underline{a}_2 und \underline{a}_3 beschrieben. Diese Vektoren haben je nach Gittertyp unterschiedliche Längen und Winkel zueinander und beschreiben ein Punktgitter \underline{g} :

$$\underline{g} = l_1 \underline{a}_1 + l_2 \underline{a}_2 + l_3 \underline{a}_3 \quad (5.1.1)$$

Zu diesem Punktgitter läßt sich ein reziprokes Gitter mit dem Gittervektor \underline{G} entwickeln:

$$\underline{G} = h \underline{b}_1 + k \underline{b}_2 + l \underline{b}_3 \quad (5.1.2)$$

Die Koeffizienten h , k und l sind die Millerschen Indizes, die auch zur Kennzeichnung der Kristallebenen benutzt werden. Das reziproke Gitter \underline{G} muß folgende Gleichung mit einem beliebigen ganzzahligen 'm' erfüllen:

$$\underline{G} \cdot \underline{g} = 2\pi m \quad (5.1.3)$$

Aus Gleichung (5.1.3) ergeben sich die Basisvektoren des reziproken Gitters. Sie sind demnach durch folgende Verhältnisse zwischen einem Kreuzprodukt und einem Spatprodukt der realen Basisvektoren definiert:

$$\begin{aligned} \underline{b}_1 &= \frac{\underline{a}_2 \times \underline{a}_3}{\underline{a}_1 \cdot (\underline{a}_2 \times \underline{a}_3)} 2\pi & \underline{b}_2 &= \frac{\underline{a}_3 \times \underline{a}_1}{\underline{a}_2 \cdot (\underline{a}_3 \times \underline{a}_1)} 2\pi \\ \underline{b}_3 &= \frac{\underline{a}_1 \times \underline{a}_2}{\underline{a}_3 \cdot (\underline{a}_1 \times \underline{a}_2)} 2\pi \end{aligned} \quad (5.1.4)$$

Die Basisvektoren des reziproken Gitters beinhalten ein umgekehrtes Verhalten zu dem Realgitter, d.h. Kristallebenenscharen werden als Punkte abgebildet. Mit dem Konzept des reziproken Gitters kann die 3D-Beugung anschaulich erklärt werden. Der aus der Elektronenkanone austretende Elektronenstrahl hat je nach eingestellter Beschleunigungsspannung eine definierte de Broglie Wellenlänge λ . Für die Beschreibung des Beugungsbildes wird der Wellenzahlvektor \underline{k} benutzt. Der Betrag des Wellenzahlvektors $|\underline{k}|$ errechnet sich aus λ :

$$|\underline{k}| = 2\pi/\lambda \quad (5.1.4)$$

Ein 3D-Beugungsbild setzt sich aus der charakteristischen Anordnung von einzelnen Beugungspunkten zusammen [Kit96]. Für jeden Beugungspunkt gilt, daß die vektorielle Differenz zwischen dem Wellenvektor der einfallenden Welle (\underline{k}) und der ausfallenden Welle (\underline{k}') in dem reziproken Gitter einem Gittervektor (\underline{G}) entsprechen muß:

$$\underline{G} = \underline{k} - \underline{k}' \quad (5.1.5)$$

Durch die Ewald – Konstruktion im reziproken Raum lassen sich die Lösungen von Gleichung (5.1.5) für die Beugung von ebenen Wellen an einem Gitter auch geometrisch darstellen [Kit96]. Dieser Sachverhalt ist gleichbedeutend mit einem Schnittpunkt der Lauekugel (Radius = $|\underline{k}|$) mit den Translationspunkten im reziproken Gitter (Abb. 5.1.2).

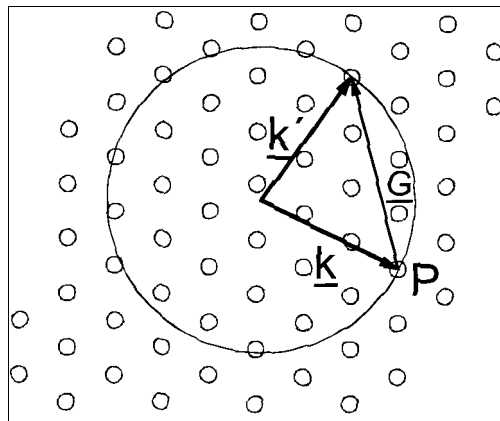


Abb. 5.1.2: Verdeutlichung des Entstehens von Beugungspunkten mit der Ewald - Konstruktion.

Die 3D-Beugungsbilder werden üblicherweise bei der Durchstrahlung von Kristallen, wie z. B. bei dem Transmissionselektronenmikroskop (TEM), gewonnen. Bei RHEED treten diese Durchstrahlungen bei sehr rauen Oberflächen auf. Der Elektronenstrahl trifft seitlich auf die Unebenheiten der Kristalloberfläche und liefert beim Austritt das 3D-Beugungsbild. Bei glatten Kristallflächen, wie sie z.B. bei der Spaltung von Einkristallen im UHV entstehen [Hen94], bekommt man ein grundsätzlich anderes Beugungsbild, das sogenannte 2D-Beugungsbild. Das 2D-Beugungsbild kann mittels einer Grenzwertbetrachtung aus dem obigen Formalismus entwickelt werden. Die geringe Eindringtiefe senkrecht zur Kristalloberflä-

che des RHEED-Elektronenstrahles bewirkt bei einer atomar glatten Oberfläche, daß die Periodizität des Kristalls senkrecht zur Oberfläche mit RHEED nicht erfaßt werden kann. Der formal nicht vorhandenen Gitterperiodizität senkrecht zur Oberfläche (d.h. die Periodenlänge geht gegen unendlich) müßte man im reziproken Raum einen Gittervektor mit verschwindender Länge zuordnen. Die Punkte des dreidimensionalen reziproken Gitters laufen also bezüglich einer Richtung zusammen und bilden Stäbe. Diese Stäbe bilden in der Ewald - Konstruktion ebenfalls Schnittpunkte mit der Lauekugel. Aus der Abb. 5.1.3 ist zu erkennen, daß bei einer idealen 2D - Beugung mit RHEED ein Punktemuster auf Halbkreisen entsteht. Diese Halbkreise werden auch Lauekreise genannt. Experimentell können diese idealen 2D-Beugungsbilder mit einer entsprechend präparierten Oberfläche gewonnen werden [Hen94].

In der Praxis führen mehrere Effekte zu einer Modifizierung dieses Idealbildes. Die

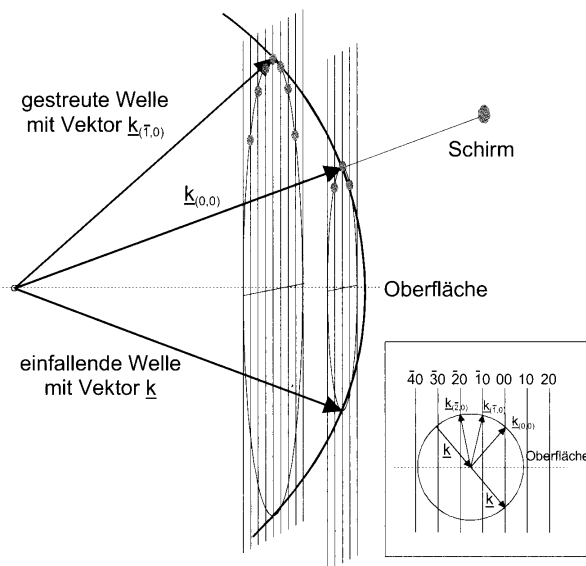


Abb. 5.1.3: Entstehung von Beugungspunkten auf Lauekreisen bei der 2D Beugung mit RHEED [Sch98].

Verbreiterung des Energiespektrums der inelastisch gestreuten Elektronen, was mit einer bestimmten endlichen Dicke der Ewaldkugel gleichzusetzen ist, führt dazu, daß nicht mehr einzelne scharfe Beugungsreflexe auf dem RHEED-Schirm entstehen sondern ellipsenförmige Punkte. Die Stäbe in der Ewald-Konstruktion sind nur für eine unendlich ausgedehnte Kristalloberfläche infinitesimal dünn. Der fokussierte Elektronenstrahl der Elektronenkanone erfaßt aber nur einen begrenzten Ausschnitt der Oberfläche. Damit haben die Stangen immer eine endliche Ausdehnung. Störungen auf der Oberfläche, oder im oberflächennahen Bereich,

tragen entscheidend dazu bei, daß die zusammenhängenden kristallographischen perfekten Bereiche auf der Oberfläche deutlich verkleinert werden. Der Durchmesser der Stangen in der Ewald-Konstruktion nimmt zu. Es ergeben sich langgezogene Schnittpunkte der Stangen mit der Ewald-Kugel, die zu Beugungsstrichen auf dem RHEED-Schirm werden [Gif95]. Diese RHEED - Bilder waren typisch für die Prozesse, wie sie in Kapitel 7 vorgestellt werden. In Abb. 5.1.4 wird gezeigt, wie sich eine Mosaikstruktur bzw. eine facettierte Oberfläche auf die Stangen in der Ewald-Konstruktion auswirkt. Es kommt zu einer Verkipfung der Stangen im reziproken Raum. Auf dem RHEED-Schirm kann diese Verkipfung analysiert werden.

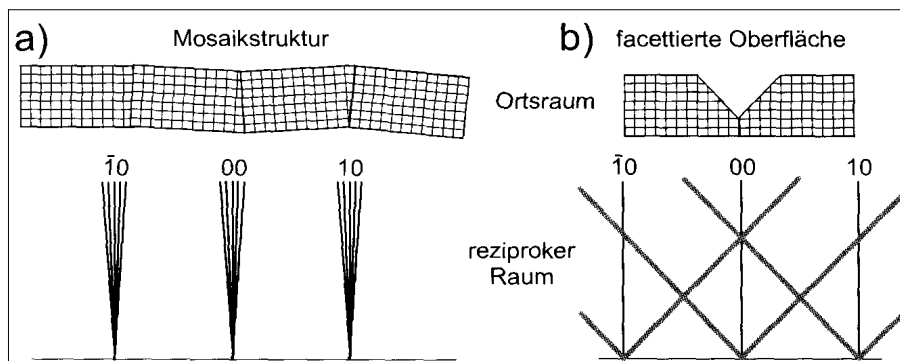


Abb. 5.1.4: Reflexverbreiterungsmechanismen für RHEED [Hen94]

- Einfluß der Endlichkeit des mit RHEED detektierten Oberflächenabschnittes und der de Broglie Wellenlängenverteilung auf die RHEED - Reflexe
- Einfluß der Oberflächenmorphologie auf das RHEED - Bild

5.2 Extinktion

Für das Verständnis und die Berechnung der RHEED-Beugungsbilder ist die Kenntnis der mittleren Eindringtiefe bzw. Abschwächung (Extinktion) des Elektronenstrahles beim Eintritt in den Festkörper unerlässlich. Im Gegensatz zur Beugung langsamer Elektronen (Low Energy Electron Diffraction - LEED), bei denen mit einer Universalkurve [Sea79] die energieabhängige Eindringtiefe bestimmt wird, gibt es für RHEED keine entsprechende Referenzkurve. Daher ist eine eingehendere Diskussion dieser Größe notwendig. Im Experiment kann die Eindringtiefe der RHEED-Elektronen gerätetechnisch über den Einfallswinkel und der Beschleunigungsenergie der Elektronen eingestellt werden. Das Kristallgitter, die Oberflächenmorphologie der Schicht und die Streuquerschnitte der beteiligten Atome beeinflussen ebenfalls die Extinktion. Durch die Probe ist damit bis auf die Morphologie keine Variation möglich.

Die Betrachtung der effektiven Eindringtiefe des Elektronenstrahles ist bei der RHEED-Simulation je nach verwendeter Beugungstheorie dynamisch oder kinematisch in zwei Kategorien zu unterteilen. Die theoretisch umfassendste Beugungsbeschreibung wird von der dynamischen Theorie geleistet. Im Gegensatz zur kinematischen Theorie berücksichtigt die dynamische Theorie sowohl mehrfach elastische Streuungen, als auch Effekte die von inelastischer Streuung herrühren. Ein interessanter sichtbarer Effekt der Mehrfachstreuung von Elektronen sind die Kikuchilinen. Sie werden durch sekundäre Braggbeugung von inelastisch, diffus vorwärtsgestreuten Elektronen an verschiedenen Netzebenen des Kristalls verursacht [Böl88]. Die Eindringtiefe ist für die Berechnung der Beugungsmuster mit dynamischen Simulationen, besonders kritisch zu bewerten. Hier hat sich noch keine einheitliche Festlegung durchgesetzt. Ma et al. [Ma94] geht von fünf Doppellagen bei der Simulation der Si(111) (7x7) aus. In der Veröffentlichung [Ich83] wurde bei der Simulation der MgO(001) Oberfläche von einer Wechselwirkung mit bis zu 100 Monolagen ausgegangen. Die Extinktion wurde sowohl bei [Ma94] als auch bei [Ich83] mittels eines komplexen Potentials in der Berechnung berücksichtigt. Die Eindringtiefe in der dynamischen Theorie resultiert aus der Erfassung der inelastischen Streuprozesse. Diese Absorptionseffekte führen zu einer Veränderung der de Broglie-Wellenlänge. Die Extinktion liefert in der kinematischen Theorie ein Maß für den verbleibenden Anteil an Elektronen mit der ursprünglichen de Broglie Wellenlänge. Da die Elektronen im Falle von RHEED relativ weniger an Energie durch die charakteristischen Energieverluste wie Ionisierung, Elektronen-, Plasmonen- und Schwingungsanregungen verlieren als z.B. bei LEED, liefert die kinematische Simulation eine gute Übereinstimmung zu den Experimenten. Für die später durchzuführenden kinematischen Simulationen kann in der Literatur auf eine Reihe von Abschätzungen zur Eindringtiefe zurückgegriffen werden. Im folgenden sollen die drei unterschiedlichen Betrachtungsweisen dieser Problematik erläutert werden. All diese Extinktionsbeschreibungen haben gegenüber der Beschreibung mit dem komplexen Potential in der dynamischen Theorie den Vorteil größerer Anschaulichkeit. Zum

einen kann die Abschwächung der Intensität des Elektronenstrahles über eine geometrische Betrachtung der Atompositionen hergeleitet werden [Bra96]. Desweiteren existiert eine Formulierung der Eindringtiefe über eine theoretisch hergeleitete mittlere freie Weglänge, die eine grobe Abschätzung für eine RHEED-Simulation liefert [Gif95]. Die materialspezifische Berechnung der Extinktion aus den Streuquerschnitten wird in [Wei93] durchgeführt.

In [Bra96] ist eine kinematische Simulationssoftware entwickelt worden, die für die Verifizierung von Oberflächenrekonstruktionsmodellen auf GaAs eingesetzt wurde. Eine Intensitätsprofilanalyse der Volumenbeugungsstäbe wurde nicht vorgenommen. Es wurde stets der Gesamteindruck von dem simulierten und experimentell ermittelten RHEED-Bild verglichen und hier waren vor allem die RHEED-Intensitätsstäbe mit gebrochener Ordnung, also die Intensitätsstäbe der Rekonstruktionen, für den Gesamteindruck entscheidend. Für den Beitrag der Einzelatome der Rekonstruktion zu dem Gesamtbild wurde explizit keine Abschwächungsfunktion angegeben sondern eine mehr anschauliche geometrische Bewertung vorgenommen. Den Atomen der Oberflächenrekonstruktion kann vakuumseitig ein Raumwinkelbereich zugeordnet werden, in dem der Elektronenstrahl ungehindert das Atom erreichen kann ohne vorher mit einem zweiten Atom in Wechselwirkung getreten zu sein. Das entsprechende gilt natürlich für die gebeugten Elektronenwellen. Der Intensitätsbeitrag der Einzelatome nach diesem Abschattungskriterium richtet sich daher weniger nach dem Abstand zu der Oberfläche als vielmehr nach der Anordnung der Nachbaratome. Die Top-Atome der Rekonstruktion bekamen den relativen Bewertungsfaktor 1 und die in der zweiten Ebene, von den oberen Atomen teilweise seitlich abgeschirmt, den Faktor 0,5. Atome, die in der zweiten Ebene nur von einer Seite abgeschirmt waren, bekamen den Faktor 0,75...0,6 und die Atome in der dritten Ebene mit dem gleichen Freiraum zu einer Seite den Faktor 0,25. Alle weiteren Atompositionen in der Rekonstruktion, denen gemäß dieser Abschattungsbewertung ein geringerer Faktor als 0,25 zugeordnet werden müßte, wurden nicht berücksichtigt.

Für den Vergleich des Extinktionskoeffizienten mit anderen Literaturstellen ist es notwendig einen Exponentialausdruck zu formulieren, der den Beitrag der Atome zu dem Beugungsbild in Abhängigkeit von dem Abstand z , in nm gemessen, von der Oberfläche beschreibt (Abb. 5.2.1).

Der Elektronenstrahl dringt unter dem Winkel χ in die Festkörperoberfläche ein. Nach einer bestimmten Strecke, die mit der mittleren freien Weglänge Λ des Elektrons korreliert, treffen die Elektronen auf ein Atom, welches als Streuzentrum wirkt. Die gebeugten Elektronen verlassen den Kristall unter dem Winkel α und liefern das Beugungsbild. Die Elektronen legen insgesamt eine Strecke l in dem Kristall zurück.

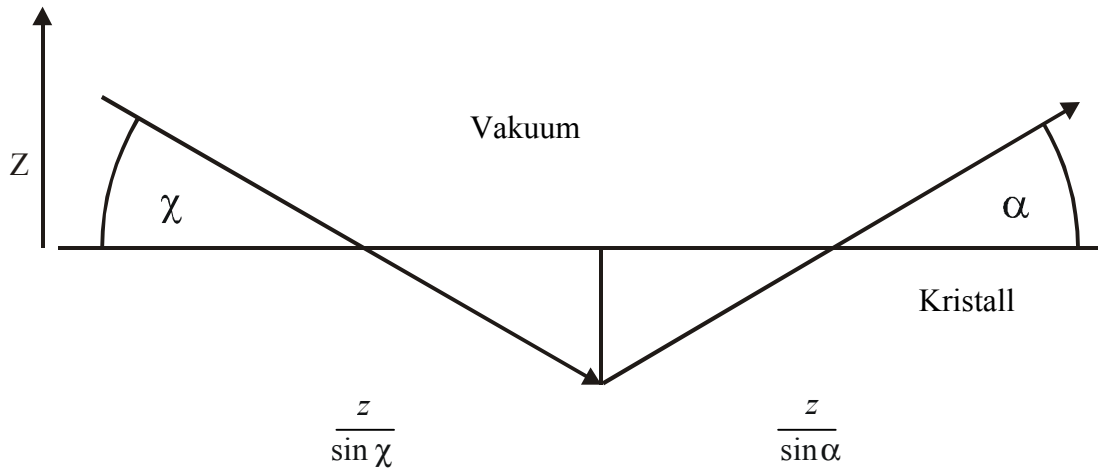


Abb. 5.2.1: Geometrische Erläuterung des Extinktionskoeffizienten

Der Extinktionskoeffizient lautet damit:

$$e^{-\frac{I}{\Lambda}} = e^{\frac{1}{\Lambda} \left(\frac{1}{\sin \chi} + \frac{1}{\sin \alpha} \right) z} = e^{\zeta z} \quad (z < 0) \quad (5.2.1)$$

Der Wert für ζ , im folgenden auch als linearer Schwächungsfaktor bezeichnet, lautet gemäß den Überlegungen von [Bra96] $\zeta = 0,05 \text{ nm}^{-1}$ für Einfallswinkel zwischen $1,5^\circ$ und 2° bei GaAs bei einer Beschleunigungsenergie von 25 kV. Da in der Festlegung des Extinktionskoeffizienten nach [Bra96] keine spezifischen Materialparameter des GaAs verwendet wurden, ist eine Umrechnung des Extinktionskoeffizienten auf Si und SiC nicht möglich. Aus anderen Literaturstellen kann ein Wert für ζ entnommen werden, der eine Umrechnung auf andere Materialien ermöglicht [Gif95, Wei93].

In [Gif95] wurde die Eindringtiefe über die mittlere freie Weglänge des Elektronenstrahles abgeschätzt. Für ein kubisch flächenzentriertes Gitter mit einer Gitterkonstanten von 6 Angström wird eine mittlere freie Weglänge des Elektronenstrahles bei einer Beschleunigungsenergie von 20 kV mit einigen hundert Angström für realistisch gehalten. Ein typischer Einfallswinkel von 1° und ein mittlerer Ausfallswinkel von 2° liefert eine Abschwächung des Intensitätsbeitrages der Atome in negativer z-Richtung mit $\exp(0,02 \cdot z)$ bei einer mittleren freien Weglänge von 400 Angström. Die mit einigen 100 Angström angenommene mittlere freie Weglänge deckt sich mit den Angaben von [Lag93]. Da in der Literatur auch noch deutlich geringere mittlere freie Weglängen diskutiert werden (100 Angström für 30 kV [And96], 275 Angström für 100 kV [Kor90]) ist es notwendig, die Extinktion mit einer anderen Be-

trachtungsweise zu stützen. In [Wei93] wird die Eindringtiefe aus geometrischen Überlegungen und einem Streuquerschnitt σ hergeleitet:

$$\sigma = \frac{T\lambda^2 Z^{4/3}}{\pi(1 - \rho^2/c^2)} \quad (5.2.2)$$

In der Gleichung (5.2.2) stellt Z die Kernladungszahl des Streuatoms und c die Lichtgeschwindigkeit dar. Die de-Broglie-Wellenlänge und die Geschwindigkeit des Elektronenstrahles sind mit λ bzw. ρ gegeben. Der Faktor T stellt eine Fitgröße dar, die zwischen 1..2 variiert. Der Exponent $4/3$, mit dem die Kernladungszahl in der Gleichung (5.2.2) gewichtet wird, stellt keine Mittelung zwischen elastischer und inelastischer Streuung dar, wie es die differentiellen Wirkungsquerschnitte für die elastische Streuung $d\sigma_e \sim Z^2$ und der inelastischen Streuung $d\sigma_{ie} \sim Z^1$ aus der quantenmechanischen Herleitung in [Lan92] vermuten lassen. Der Streuquerschnitt gemäß Gleichung (5.2.2) gilt nur für die kinematische Streuung und der gebrochene Exponent der Kernladungszahl Z rührt von der Ermittlung des Formfaktors nach dem Thomas-Fermi-Verfahren für die Berechnung der Elektronendichte des Atoms.

In der Veröffentlichung [Wei93] ist die Eindringtiefe des Elektronenstrahles für eine ZnSe (001)-Oberfläche berechnet worden. Für diesen speziellen Fall ist der Faktor T mit 1 angenommen worden. Eine Erklärung für diese Festlegung gibt es in der Veröffentlichung nicht. Für eine Simulation der hexagonalen Polytype 4H und 6H des SiC ist die Eindringtiefe des Elektronenstrahles in Abhängigkeit von der Wellenlänge, der Dichte des Materials und der Kernladungszahl aus den Angaben von [Wei93] errechnet worden. Da bei den SiC-Polytypen die (0001)-Oberfläche, unter Berücksichtigung einer bestimmten Anzahl von Lagen, simuliert wurde, ist der Faktor T in diesem Fall mit 2 gewählt worden. Die dicht gepackten Bilagen der (0001)-Oberflächen verhindern in einem stärkeren Maße den Durchtritt des Elektronenstrahles zur nächsten Ebene als die durchlässigeren (001)-Ebenen der Zinkblendestruktur des ZnSe's. Mit dieser Festlegung ergab sich eine Abschwächung des Intensitätsbeitrages der Atome in negativer z -Richtung mit $\exp(0,021 \cdot z)$ für die Simulation der oben genannten SiC-Polytype bei einer Beschleunigungsspannung von 30 kV. Die z -Position der Atome wird in 'nm' gemessen. Es sei an dieser Stelle noch angemerkt, daß die Dichte des 3C-SiC-Polytyps sich erst in der dritten Nachkommastelle von den hexagonalen Polytypen unterscheidet [Har95] und damit gemäß den obigen Überlegungen die Eindringtiefe des Elektronenstrahles für SiC als polytypunabhängig angenommen werden kann.

Für die spätere Simulation von kohlenstoffinduzierten Rekonstruktionen auf den Si-Oberflächen wurde ebenfalls mit einer Extinktion gemäß $\exp(0,021 \cdot z)$ gerechnet. Die Kernladungszahl des Siliziums liegt um 40 % höher als die mittlere Kernladungszahl in dem Siliziumcarbid, was den Streuquerschnitt gemäß Gleichung (5.2.2) vergrößert. Die Gitterkon-

stante von Si ist aber um 24 % größer als die von 3C-SiC. Da neben dem Streuquerschnitt noch das Quadrat der Gitterkonstante in die Berechnung nach [Wei93] einfließt, führt dies nur zu einem Unterschied in der dritten Nachkommastelle von ζ (SiC: $0,0213 \text{ nm}^{-1}$; Si: $0,0214 \text{ nm}^{-1}$). Die Extinktionskoeffizienten für Si und SiC sollen daher als identisch betrachtet und der lineare Schwächungsfaktor $\zeta=0,021 \text{ nm}^{-1}$ für die Berechnung der Abschwächung des Elektronenstrahles benutzt werden. Es sei der Vollständigkeit halber an dieser Stelle noch erwähnt, daß mit der materialspezifischen Betrachtungsweise des Extinktionskoeffizienten von [Wei93] eine relative Umrechnung des Abschwächungskoeffizienten von [Bra96] auf SiC erfolgen kann. Diese relative Umrechnung liefert ein $\zeta=0,018 \text{ nm}^{-1}$. Damit können die drei unterschiedlichen Vorgehensweisen in der Bestimmung des linearen Schwächungsfaktors bis auf rund 15 % Abweichung zusammengeführt werden.

5.3 Bestimmung des mittleren inneren Potentials

Die kinematische Streutheorie zur Elektronenbeugung geht von verlustfreien Wechselwirkungsprozessen der Elektronen mit dem Festkörper aus. In diesem Bild muß unter Berücksichtigung des Energieerhaltungssatzes die Bewegungsenergie, der in den Festkörper eindringenden Elektronen, erhöht werden. Beim Austritt der Elektronen wird die Bewegungsenergie entsprechend verringert. Dieser Unterschied in den Bewegungsenergieen, innerhalb und außerhalb des Festkörpers, korreliert mit einem Spannungswert Φ . Der Wert Φ , das mittlere innere Potential (MIP), ist der räumliche Mittelwert des periodischen Potentialfeldes im Kristall [Wan96].

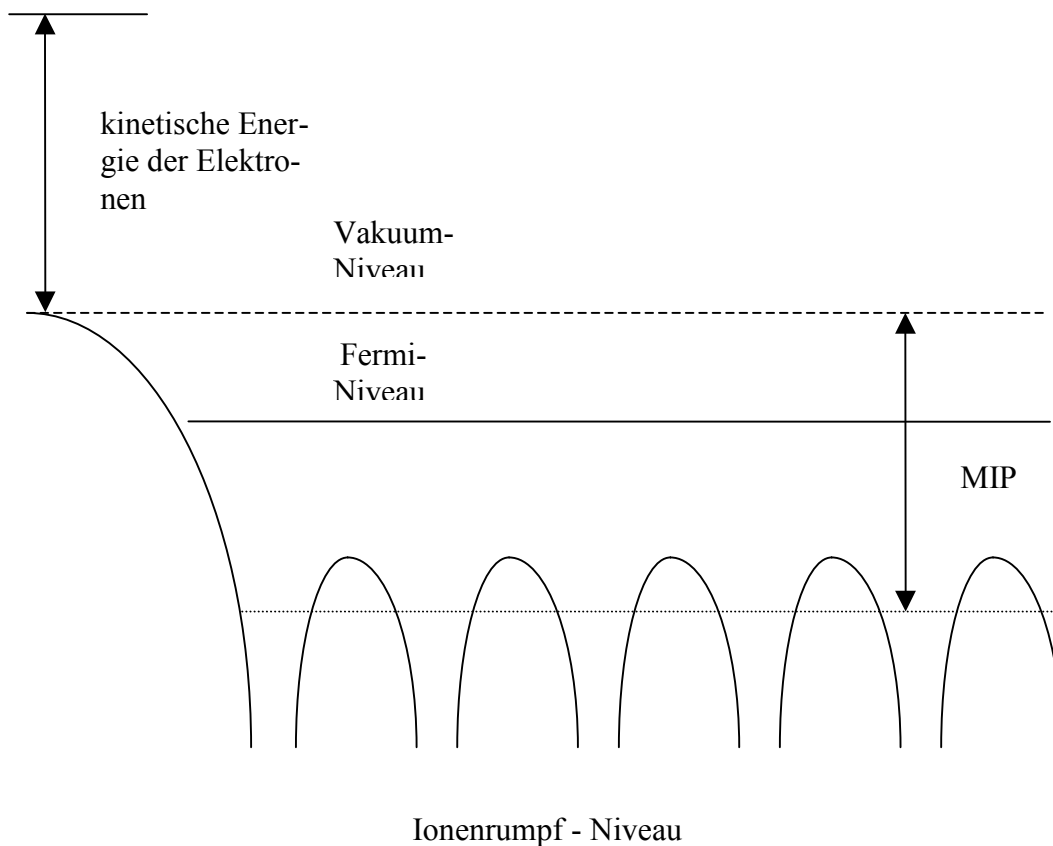


Abb. 5.3.1: Energiediagramm zur Verdeutlichung der Vergrößerung der kinetischen Energie der Elektronen beim Eindringen in den Kristall.

Die Elektronen besitzen innerhalb und außerhalb des Festkörpers eine konstante Gesamtenergie, die kinetische Energie aus dem Beschleunigungssystem der RHEED-Kanone und eine potentielle Energie, die mit dem MIP quantifiziert wird. Dringen die Elektronen von außen in den Kristall ein, so wird die potentielle Energie in kinetische Energie umgewandelt. Der Wellenzahlvektor, im folgenden als \underline{k} -Vektor bezeichnet, vergrößert sich entsprechend.

Da der zur Oberfläche parallele Anteil des \underline{k} -Vektors bei dem Durchtritt durch die Grenzfläche unverändert bleibt, wird nur die senkrechte Komponente vergrößert. Diese Richtungsänderung der Elektronen bzw. der de Broglie Wellenlänge wird im folgenden analog zur Optik als Brechung bezeichnet. Entsprechend kann dieser Sachverhalt mit einem elektronenoptischen Brechungsindex μ beschrieben werden:

$$\mu = \sqrt{(U + \Phi)/U'} \quad (5.3.1)$$

Die Größe U' stellt eine relativistische Korrektur der Beschleunigungsspannung U dar:

$$U' = \left(1 + \frac{eU}{2m_0c^2} \right) \quad (5.3.2)$$

Wobei m_0 die Ruhemasse des Elektrons und c die Lichtgeschwindigkeit ist. Die Kenntnis des mittleren inneren Potentials ist für die experimentelle Auswertung der RHEED-Beugungsbilder in mehrfacher Hinsicht von Bedeutung.

Erstens müssen die Braggbedingungen für die Berechnung des dreidimensionalen Beugungsbildes mit dem mittleren inneren Potential korrigiert werden. Eine solche Korrektur ist in [Mül94] für Silizium zu finden. Desweiteren ist die Kenntnis des Potentials bei der Beobachtung der Oberflächenrekonstruktionen und der morphologischen Veränderungen der Oberfläche von Bedeutung. Unter Berücksichtigung des Einfallswinkels des Elektronenstrahles, der de-Broglie-Wellenlänge der Elektronen, des MIP's und des Netzebenenabstandes können experimentell Beugungsbedingungen eingestellt werden, die den Bragg-Bedingungen genügen. In diesem Fall spricht man von den *in phase* und, falls dies nicht der Fall ist, von *out phase*-Bedingungen. Die *out phase* Beugungsbedingungen sind besonders geeignet um Veränderungen der Festkörperoberfläche zu detektieren [Gif95]. Bei der Beobachtung der Existenzgebiete der Rekonstruktionen werden daher die *out phase* Bedingungen eingestellt.

Desweiteren wird das MIP für die Simulation von 3D- und 2D-Beugungsbildern benötigt [Bra96]. Der Einfallswinkel des Elektronenstrahles beeinflusst immer im Wechselspiel mit dem MIP die Intensitätsverteilung in dem RHEED-Bild. Für die Simulation von Beugungsbildern kann man sich diesen Zusammenhang zunutze machen und mit einer Variation des Einfallswinkels einen bestimmten möglichen Toleranzbereich des MIP's mit erfassen [Ma94]. Für die Auswertung der experimentellen RHEED-Bilder muß der Einfallswinkel bekannt sein. Die Bestimmung mit zusätzlichen Hilfsmitteln, wie die Justage des Elektronenstrahles zur Festkörperoberfläche mittels Laser, setzt einen zusätzlichen Aufwand voraus [Mül94]. Die Kikuchilinien können für die Winkelbestimmung ebenfalls herangezogen werden. Diese Methode ist in der Literatur bisher noch nicht beschrieben worden und stellt eine

umgekehrte Vorgehensweise als bei der Potentialbestimmung dar. Auf diesen Sachverhalt wird später noch ausführlich eingegangen.

Im folgenden werden unterschiedliche Methoden für die Bestimmung des MIP's erläutert und eine geeignete Auswahl getroffen. Bei dem RHEED-Meßsystem dringt der Elektronenstrahl unter einem kleinen Winkel in die Festkörperoberfläche ein und erleidet eine Verkleinerung der de Broglie Wellenlänge und damit eine Vergrößerung des Wellenzahlvektors \underline{k} (Abb. 5.3.2). Nach der Reflektion des Elektronenstrahles an den Netzebenen des Kristalls verlassen die Elektronen den Festkörper in Richtung Vakuum und nehmen, unter der Annahme eines kinematischen Streuprozesses, wieder die ursprüngliche de Broglie Wellenlänge an. Mit einer Methode, die sowohl das Beugungsbild im Vakuum als auch im Kristall registriert, ergibt sich aufgrund der unterschiedlichen Radien der Ewald-Kugeln ebenfalls eine mögliche Bestimmung des MIP's. Diese Beugungsbilder nennen sich *transmission-reflection high-energy-electron-diffraction* (TRHEED) Bilder [Wan96].

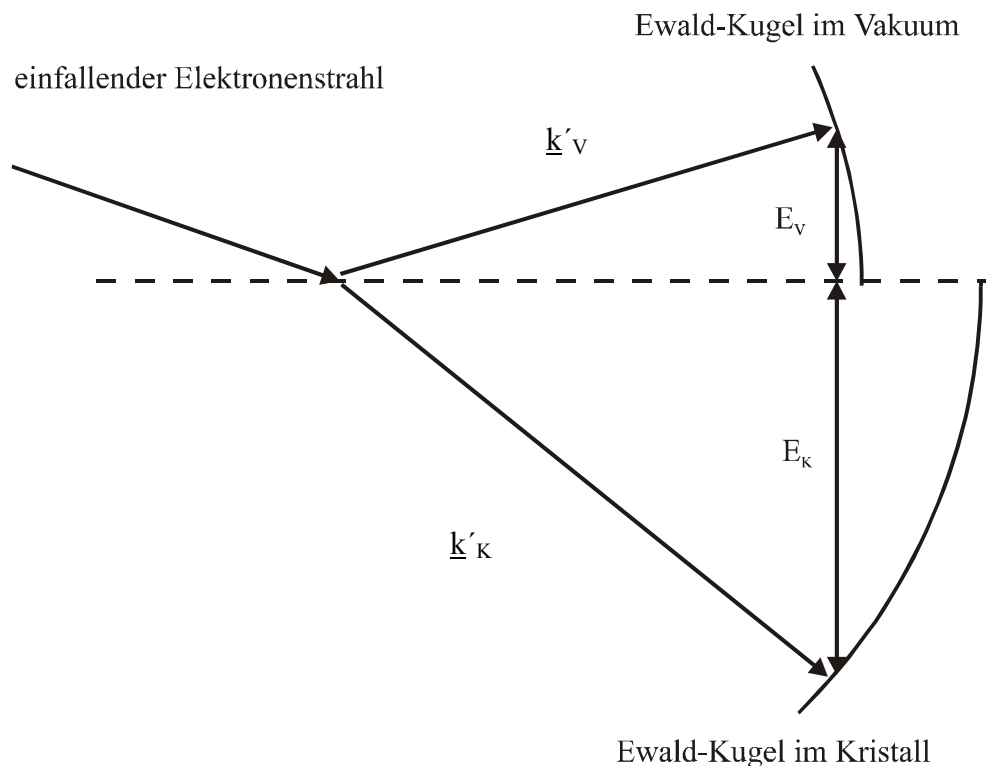


Abb. 5.3.2: Veränderung der Durchmesser der Lauekreise im Vakuum gegenüber dem Kristallinneren

Für die erste Ordnung ist der Radius des Lauekreises im Vakuum mit E_v in der Abb. 5.3.2 angegeben. Im Kristall ist der Radius des Lauekreises gleicher Ordnung mit E_k angegeben. Aus dem Verhältnis der Radien der Lauekreise kann auf das MIP des Kristalls geschlossen werden. Die Ermittlung der Lauekreise im Kristall ist mit einer Reihe von technologischen

Schwierigkeiten verbunden und wird daher nicht für die Bestimmung des mittleren inneren Potentials herangezogen.

In [Wan96] wird als weitere Methode für die Bestimmung des mittleren inneren Potentials auch die Elektronen - Holographie erwähnt. Ein kohärenter Elektronenstrahl wird so zur Probe einjustiert, daß ein Teil des Strahls die Probe durchdringt und ein anderer Teil des Elektronenstrahles unbeeinflußt von dem mittleren inneren Potential der Materialprobe als Referenzwelle erhalten bleibt. Die von dem Material beeinflusste Elektronenwelle erfährt eine Phasenverschiebung und die Überlagerung mit der Referenzwelle ergibt ein Hologramm. Durch Anfitzen des experimentell ermittelten Hologramms mit einer entsprechenden Simulation kann auf das mittlere innere Potential geschlossen werden. Diese Methode kann nur unter Verwendung eines Transmissionselektronenmikroskops durchgeführt werden.

Eine experimentelle Meßmethode, die sich ausschließlich auf die Auswertung von im Vakuum einfach detektierbaren RHEED-Bidern stützt, ist technisch am einfachsten zu realisieren. Eine Methode die sich in der Literatur etabliert hat, ist die Auswertung von Kikuchilini- en [Bra96, Gro68, Gau71]. Zum besseren Verständnis muß die Entstehung der Kikuchilini- en erläutert werden.

In [Wan96] wird eine anschauliche Erklärung für die Entstehung von den paarweisen hell-dunklen Linien, die zusammen ein Kikuchiband ergeben, geliefert. Der Elektronenstrahl wird in einer bestimmten Tiefe des Kristalls inelastisch gebeugt, so daß die Winkelverteilung des Elektronenstrahles näherungsweise mit einer Kegelform beschrieben werden kann (Abb. 5.3.3). Die Richtung der Hauptachse des Kegels soll mit \underline{k}' bezeichnet werden. Ein Teil der inelastisch gebeugten Elektronen trifft auf Kristallnetzebenen mit einem Braggwinkel Θ_g , so daß ein elastischer Beugungsprozeß zu einer hellen Kikuchilinie auf der Beobachtungsebene führt. Die Braggreflexion schwächt die Intensität des Elektronenstrahles in Richtung von \underline{k}' . Die inelastisch gestreuten Elektronen in Richtung von \underline{k}' werden verringert und es entsteht daher in einem Winkel, der $2\Theta_g$ von der hellen Kikuchilinie entfernt ist, eine dunkle Kikuchilinie. Damit entsteht eine Vielzahl von paarweise hellen und dunklen Linien. Der Kegel, der zu dem Winkel $\pi/2 - \Theta_g$ gehört, wird als Kossel-Kegel bezeichnet. Die zentrale Achse des Kegels ist der Vektor \underline{g} , der senkrecht auf der betrachteten Netzebene steht.

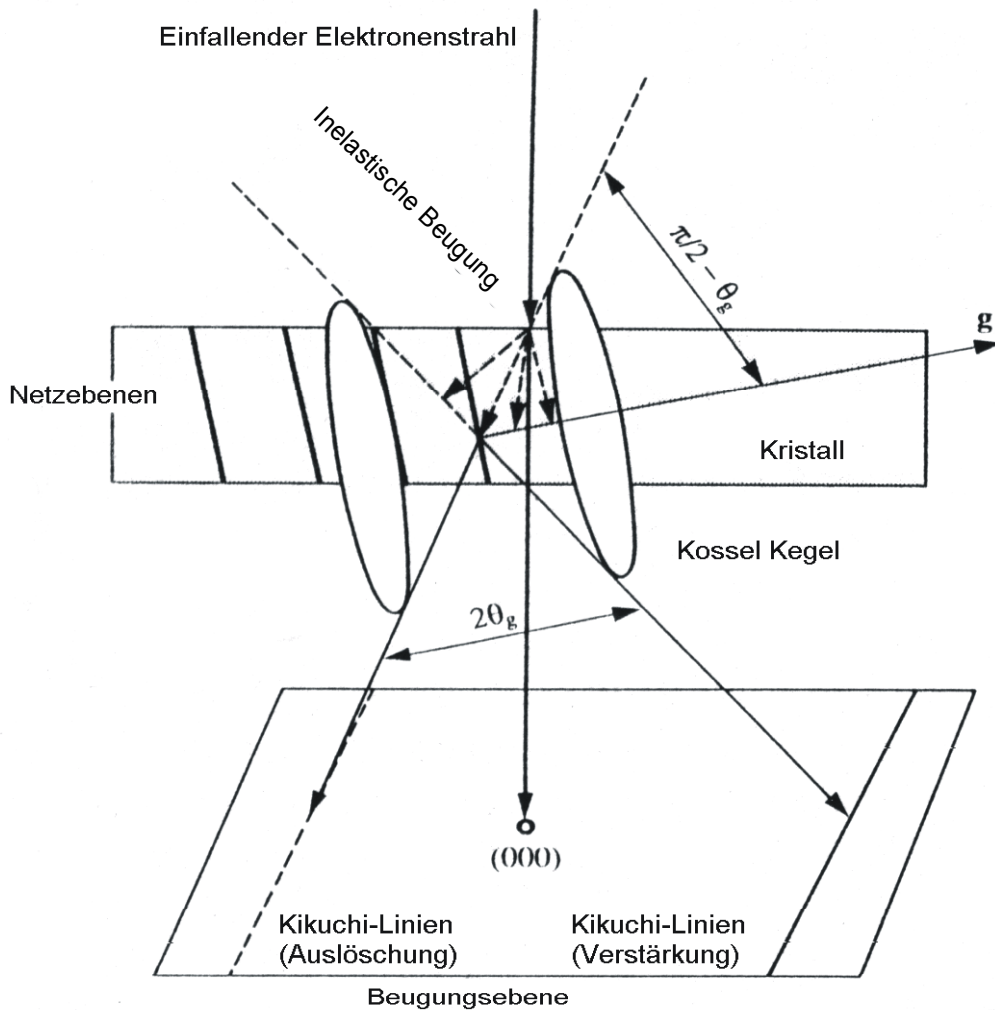


Abb. 5.3.3: Entstehung der Kikuchiliniien [Wan96]

Die aus dem Kristall austretenden Kikuchielektronen unterliegen einer Richtungsänderung beim Durchtritt durch die Grenzfläche zum Vakuum, die durch das mittlere innere Potential bestimmt wird. Bei größeren Austrittswinkeln ist diese Richtungsänderung geringer als bei kleineren. Aus diesem Grund ist das MIP bei dem streifenden Einfall der Elektronen, wie bei RHEED, für eine Richtungsänderung der Kikuchielektronen beim Austritt aus dem Kristall von Bedeutung. Hieraus leitet sich ein mögliches Meßprinzip für die Ermittlung des Potentials ab. Die zur Festkörperoberfläche parallelen Kikuchiliniien können prinzipiell für die Bestimmung des MIP's herangezogen werden. An den Stufenkanten der Festkörperoberfläche kommt es zu einer Aufspaltung der Kikuchiliniien. In der Abb. 5.3.4 ist dieser Effekt erläutert.

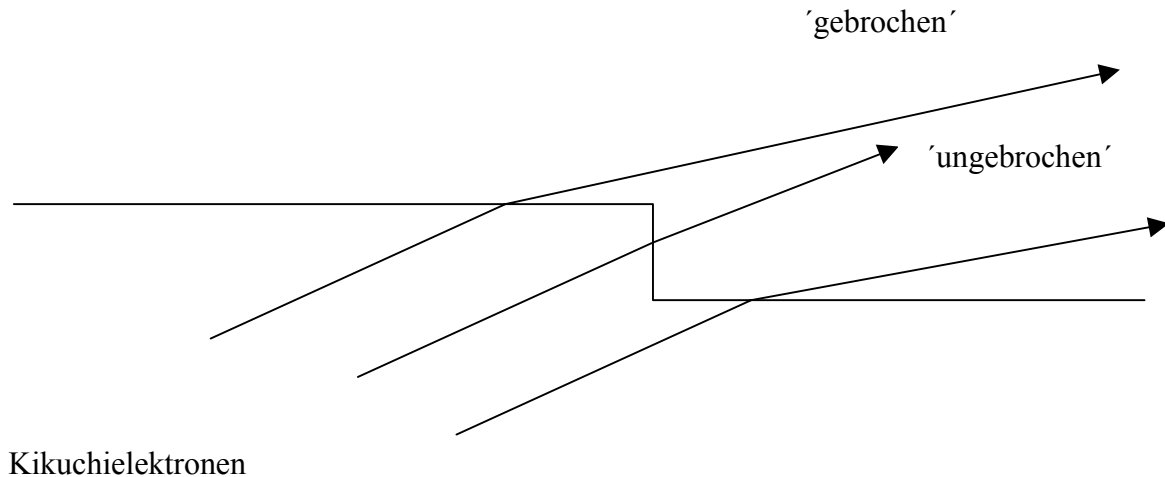


Abb. 5.3.4: Entstehung von aufgespaltenen Kikuchilini

Die Kikuchielektronen, die in einem flachen Winkel auf die Terrassen treffen, werden unter dem Einfluß des MIP's stärker aus ihrer ursprünglichen Richtung abgelenkt als die Elektronen, die auf die Stufenkante treffen. Die Kikuchilini parallel zu der Festkörperoberfläche werden durch diesen Effekt aufgespalten. Aus dem Abstand der Kikuchilini kann auf das Potential geschlossen werden [Bra96]. Die Genauigkeit dieser Methode ist durch die Morphologie und die Breite der Kikuchilini stark eingeschränkt. Daher wird diese mögliche Auswertung der Kikuchilini nicht weiter aufgearbeitet.

Ein weiteres Verfahren besteht in der Auswertung der Veränderung der Abstände zwischen den Kikuchilini unterschiedlicher Ordnungen. Ein Zusammenhang zwischen MIP und den Kikuchibändern ist in [Gro68] dargestellt. In einer späteren Arbeit [Gau71] ist dieses Verfahren weiterentwickelt worden, das hier skizziert werden soll. In Abb. 5.3.3 sind die Kikuchilini kinematisch als Folge von einer Braggreflexion nach inelastischer Streuung des Primärstrahles erklärt worden. Die Braggbedingung mit dem Braggwinkel Θ_g :

$$\sin \Theta_g = \frac{n\lambda}{2\mu d_{hkl}} \quad (5.3.3)$$

liefert die halbe Winkelbreite des Kikuchibandes n-ter Ordnung zur Netzebene $\{hkl\}$ im Kristall, wenn λ die Elektronenwellenlänge im Vakuum, μ der elektronenoptische Brechungsindex und d_{hkl} der Netzebenenabstand ist.

Aus rein geometrischen Überlegungen ergibt sich für einen Primärstrahl, der mit der Kristalloberfläche einen Winkel ϵ einnimmt, in der Beobachtungsebene ein Abstand B zwischen der verlängert gedachten Oberflächennetzebene, der Schnittlinie S_L und dem gebeugten

Elektronenstrahl (Abb. 5.3.5). Für Elektronen, die aus dem Inneren des Kristalls kommend die Kristalloberfläche unter einem Winkel Θ erreichen, verringert sich der Austrittswinkel auf α .

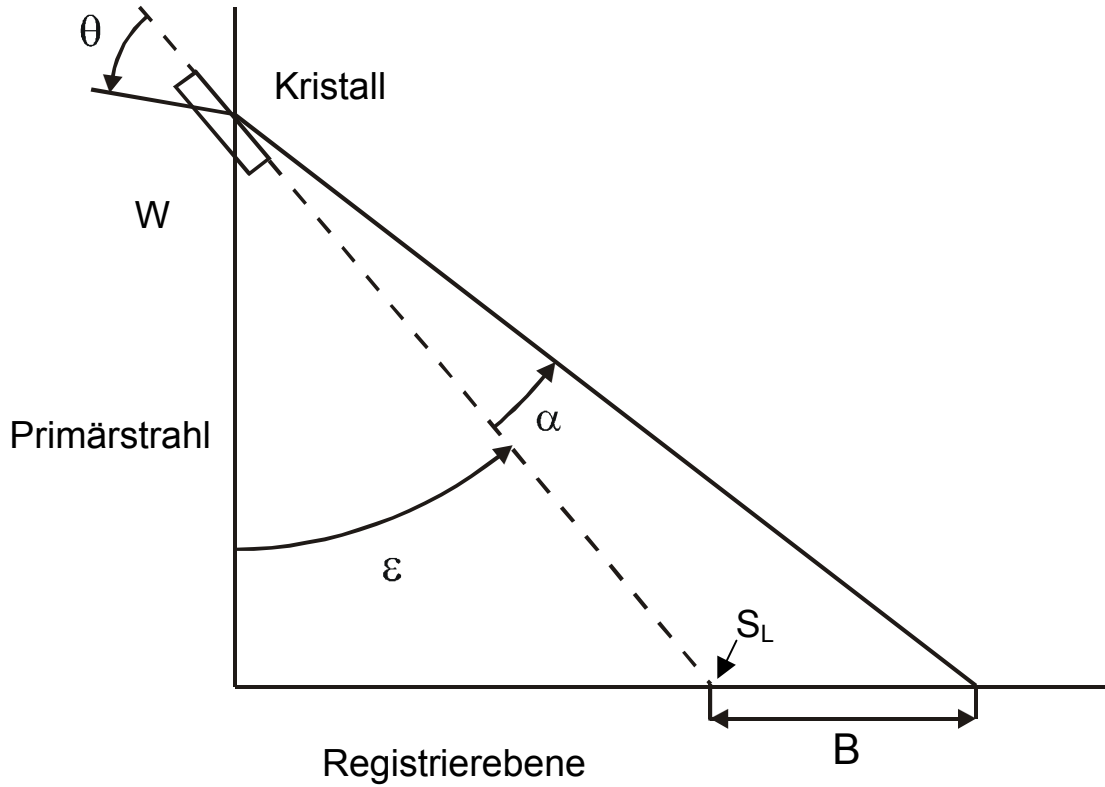


Abb. 5.3.5: Definition der Größen Θ , α , ϵ , B , S_L und W

Die Größe W stellt die effektive Beugungslänge dar. In der Registrierebene ergibt sich als Abstand zwischen der Schnittlinie S_L und dem gebeugten Elektronenstrahl die Größe B gemäß obiger Abbildung zu:

$$B = \frac{W}{\cos^2 \epsilon} \cdot \frac{\tan \alpha}{1 - \tan \alpha \tan \epsilon} \quad (5.3.4)$$

$$\tan \alpha = \sqrt{\frac{1}{\mu^2 (1 - \sin^2 \Theta)} - 1} \quad (5.3.5)$$

Damit das Kikuchiband gemäß Abb. 5.3.3 entstehen kann, muß der Elektronenstrahl im Kristallinneren mit einem Winkel Θ_g auf eine Netzebene im Kristall treffen. Für einen Spezial-

fall, d.h. falls der Kristall von einer Netzebene begrenzt wird und somit Θ_g in Gleichung (5.3.3) und Θ in Gleichung (5.3.5) identisch sind, folgt aus Gleichung (5.3.4) für $\varepsilon = 0$ und einer Reihenentwicklung die nach Gliedern 1. Ordnung abgebrochen wird gemäß [Gro68]:

$$B_n^2 = n^2 \frac{150 \cdot W^2}{4d^2 U'} - \Phi \frac{W^2}{U'} \left(1 + \frac{eU}{m_0 \cdot c^2} \right) \quad (5.3.6)$$

Die Vernachlässigung des Winkels ε führt zu einem Bestimmungsfehler des MIP's der von der Beugungsordnung der Kikuchilinie abhängt. In [Gau71] wurde für die Auswertung von Kikuchilinen 3. und 4. Ordnung bei Wolfram und einem $\varepsilon = 3^\circ$ das MIP um einen absoluten Fehler von 3 % erhöht und bei der Auswertung von Kikuchilinen der 7. und 8. Ordnung um 21 % erhöht. Für die spätere Auswertung wurden daher nur Kikuchilinen bis zur 4. Ordnung und Einfallswinkel die kleiner als 3° sind ausgewertet.

Unter Ausnutzung der Gleichung (5.3.6) sind zwei Auswertemethoden für experimentell ermittelte Kikuchidiagramme möglich. Werden die Quadrate der gemessenen Abstände B_n in Abhängigkeit von dem Quadrat der Beugungsordnung n der jeweiligen Kikuchilinen graphisch aufgetragen, so ergibt sich eine Gerade und deren Schnittpunkt mit der Ordinate liefert das Potential. Der entscheidende Nachteil dieser Bestimmungsmethode ist die stark fehlerbehaftete experimentelle Bestimmung der Schnittpunktlinie S_L . Daher wurde in [Gau71] die Bestimmungsmethode in der Weise modifiziert, daß die Differenz zweier Werte B_n für Kikuchilinen unterschiedlicher Ordnung n zur Auswertung herangezogen wird.

Dadurch erübrigt sich die genaue Kenntnis der Schnittpunktlinie S_L . Diese Methode ist bei der Auswertung von Si(111)- und 6H-SiC(0001)-RHEED-Bildern zur Anwendung gekommen. In der Abbildung 5.3.6 sind 35kV-RHEED-Bilder mit den Kikuchilinen dargestellt. Es handelte sich um nicht fehlorientierte Wafer. In der Abb. 5.3.6 sind die Ordnungen der parallelen Kikuchilinen seitlich an dem Bild angegeben. Obwohl die verwendeten Wafer keine off-Orientierung aufweisen, reicht die noch vorhandene Unebenheit der Wafer aus, daß der Effekt gemäß Abb. 5.3.4 auch hier zu einer Aufweitung der parallelen Kikuchilinen führt. Die Aufspaltung bzw. Verbreiterung der Linien wächst mit kleiner werdendem Braggwinkel. Die mit $n=2$ indizierten Kikuchilinen in Abb. 5.3.6 weisen einen breiteren Intensitätssaum auf, als die mit $n=3$ bzw. höher indizierten Linien.

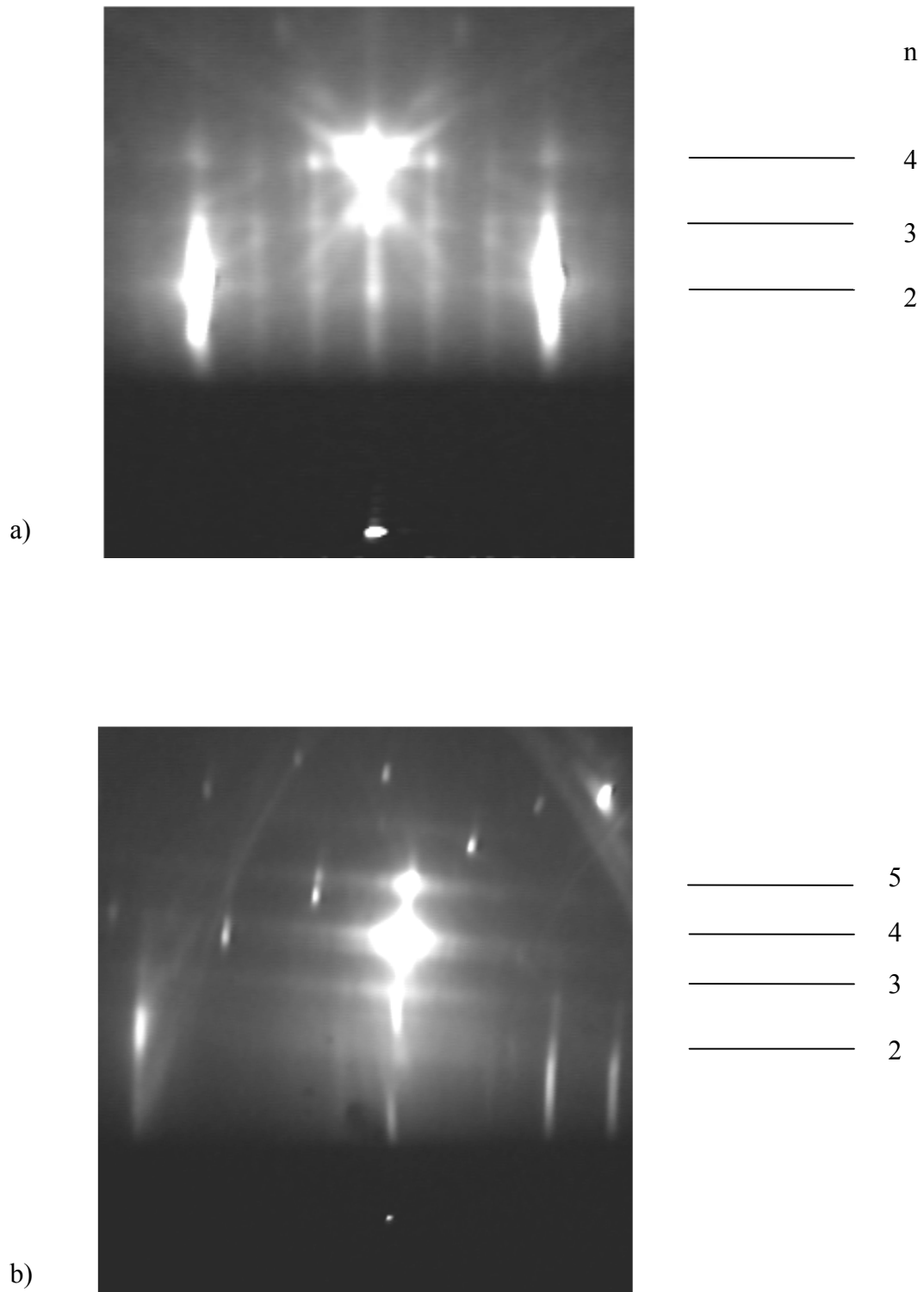


Abb. 5.3.6: Reflexions-Kikuchi-Diagramme im $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ Azimut einer a) Si(111)- und einer b) 6H-SiC(0001)-Oberfläche.

Die 6H-SiC-Probe wurde zur besseren Erkennbarkeit der Kikuchilinien leicht aus dem $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ Azimut herausgedreht. Die RHEED-Bilder wurden für unterschiedliche Spannungen in dem Bereich von 15 kV- 35 kV bei einer Variation der Einfallswinkel ausgewertet.

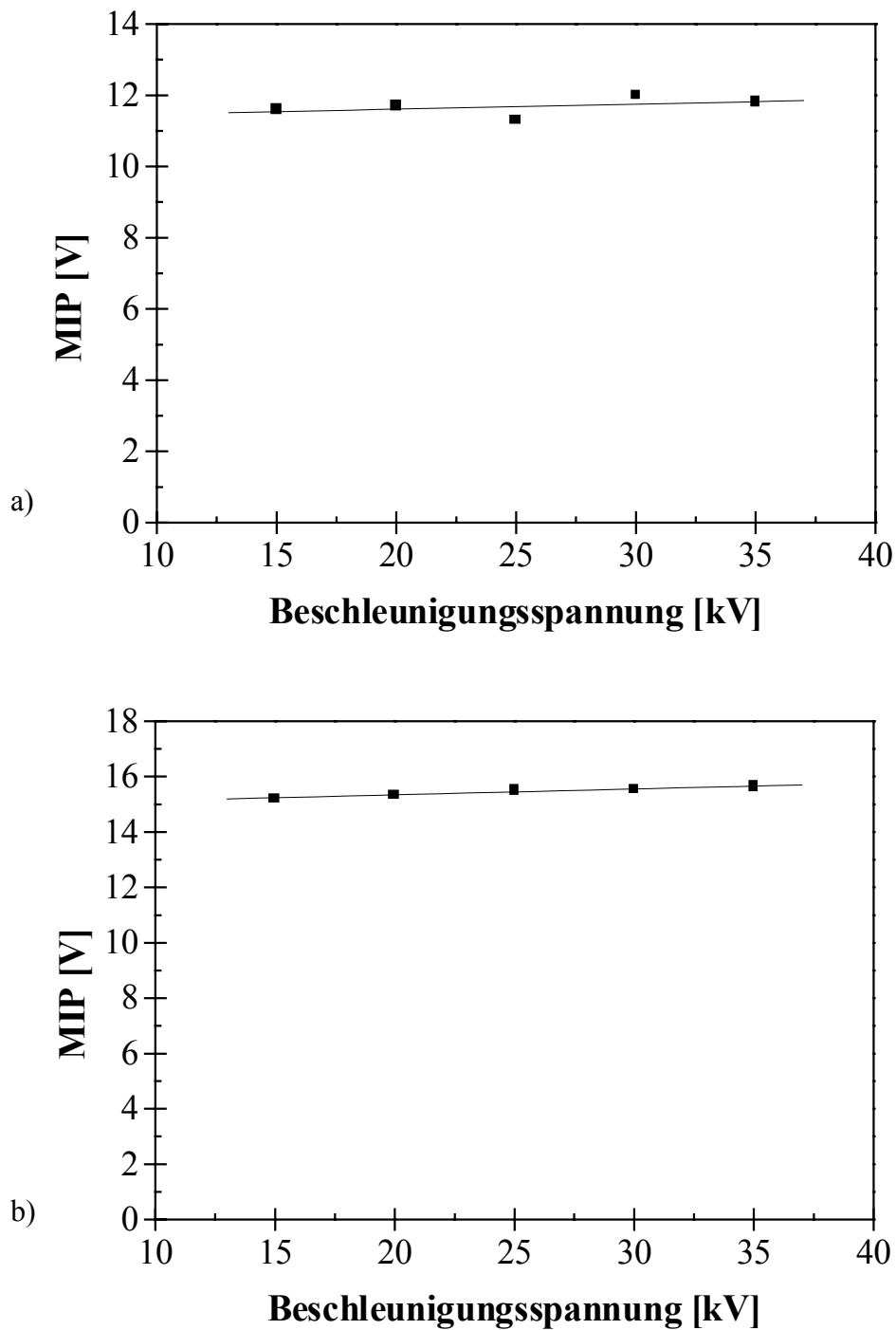


Abb. 5.3.7: Ermittlung des MIP's von Si (a) und 6H-SiC (b).

Zu jeder Beschleunigungsspannung wurden 7 RHEED-Bilder mit unterschiedlichen Einfallswinkeln aufgenommen. Der Mittelwert des MIP's beträgt für Si 11,7 V (Abb. 5.3.7 a). Die Toleranz bei der experimentellen Auswertung der Kikuchilinien liegt in der Größenordnung von $\pm 10\%$. In [Gau71] ist der Wert mit 11,5 V für Silizium mit einer Toleranz von ± 1 V bestimmt worden. In [Mül94] wird das mittlere innere Potential für Silizium mit 12 eV angegeben. Die Auswertung der Kikuchilinien für 6H-SiC liefert gemäß Abb. 5.3.7 b ein Potential von 15,4 V. Vergleichswerte für die mittleren inneren Potentiale der einzelnen SiC-Polytypen liegen in der Literatur derzeit nicht vor. Die MIP's für 3C-SiC, GaN und AlN konnten aufgrund mangelnder Kristallqualität nicht bestimmt werden.

Das MIP kann mittels einer Hartree Fock Rechnung theoretisch bestimmt werden. Die Übereinstimmung mit experimentellen Werten wird in [Vai56] diskutiert. Auffallend ist hier die relativ gute Übereinstimmung zwischen der Theorie und der Messung bei Strukturen aus einem Element und die schlechte Übereinstimmung insbesondere bei Verbindungen mit stark ionischem Anteil, was bei Silizium und Siliziumcarbid nicht vorliegt. In [Doy68] findet sich eine umfangreiche Zusammenstellung von Doyle - Turner – Fit - Parametern, die aus einer Hartree Fock Rechnung hergeleitet wurden, mit denen theoretisch der Wert des MIP's abgeschätzt werden kann:

$$\Phi = \frac{e}{16\pi^2 \epsilon_0 \Omega} \sum_{\alpha} \sum_{i=1}^4 a_i^{(\alpha)} b_i^{(\alpha)} \quad (5.3.7)$$

Die Größe ϵ_0 stellt die elektrische Feldkonstante dar und das Volumen der Elementarzelle wird mit Ω in der Gleichung (5.3.7) berücksichtigt. Für die Berechnung des Potentials werden die Atome innerhalb einer Elementarzelle berücksichtigt, die in Gleichung (5.3.7) mit α durchnummeriert sind. Das spezifische Streuverhalten der einzelnen Atome wird mit Doyle-Turner Fit-Parameter beschrieben. Für Silizium lauten diese Parameter:

a_1	b_1	a_2	b_2	a_3	b_3	a_4	b_4
6,2915	2,4386	3,0353	32,3337	1,9891	0,6785	1,541	81,6937

Der theoretische Wert für das MIP von Silizium gemäß obiger Formel berechnet sich zu 13,7 V.

Entsprechend wurde das MIP auch für 6H-SiC berechnet. Dazu benötigt man neben dem Koeffizienten des Doyle-Turner Potentials für Silizium noch die Koeffizienten für Kohlenstoff:

a_1	b_1	a_2	b_2	a_3	b_3	a_4	b_4
2,31	20,8439	1,02	10,2075	1,5886	0,5687	0,865	51,6512

Mit der Gleichung (5.3.7) ergibt sich für das 6H-SiC ein Wert von 17,5 V. Das MIP für Diamant ergibt sich nach diesem Formalismus zu 21,4V. Der experimentelle Wert für Diamant in der Literatur [Bee35] liegt bei $20,8 \pm 0,7$ V. Es ist zu erwarten, daß das MIP von 6H-SiC zwischen dem MIP für Silizium und Diamant liegt, was gemäß der Formel (5.3.7) und den experimentellen Werten auch bestätigt wird. Der theoretische Wert für das MIP liegt beim 6H-SiC genauso wie beim Silizium über dem experimentell ermittelten. Aus der Gleichung (5.3.7) ist der wichtige Schluß zu ziehen, daß die einzelnen Polytype des SiC's keinen wesentlichen Unterschied bei den MIP's zeigen sollten. Die beteiligten Atome mit ihren spezifischen Streuquerschnitten sind gleich. Die spezifische Dichte der einzelnen Polytype ist bis auf die dritte Nachkommastelle identisch [Har95]. Das bedeutet für Gleichung (5.3.7), daß das Verhältnis zwischen der Doppelsumme und dem Elementarzellenvolumen konstant bleibt. Damit wird das MIP als polytypunabhängig bei SiC betrachtet. Diese ermittelten Werte des MIP's ermöglichen nun eine verbesserte Auswertung der experimentellen Ergebnisse und eine genauere Simulation der RHEED-Bilder.

Die Kenntnis des MIP's kann für eine Einfallswinkelbestimmung des Elektronenstrahles benutzt werden. In Abb. 5.3.5 wird der Einfallswinkel ε von der verlängert gedachten Oberflächennetzebene und dem Primärstrahl aufgespannt. Falls die effektive Beugungslänge W , die Beschleunigungsspannung U und die Ordnung der Kikuchilinen bekannt ist, kann mit Gleichung (5.3.4) der Abstand zwischen der Schnittlinie S_L und der Kikuchilinie in der Registrierebene berechnet werden. Da der Primärstrahl in den RHEED-Bildern gut zu detektieren ist, kann zusammen mit der Größe S_L der Winkel ε bestimmt werden. Diese Methode ist eine alternative Methode zur Winkelbestimmung mittels Schattenkante wie sie von [Gif95] und [Mül94] angewandt wurde. Die Schattenkante bildet experimentell keinen scharfen Kontrast. Die Bestimmung wird durch einen stetigen Intensitätsabfall erschwert. Die andere mögliche Winkelbestimmung mittels Halbierung des Abstandes zwischen durchgehendem und reflektiertem Elektronenstrahl ist bezüglich der Detektion des reflektierten Elektronenstrahles im Beugungsbild problematisch. Die Überlagerung von Kikuchilinen mit den Intensitätsstrichen verändert die Intensitätsmodulation im RHEED-Bild. Damit ist der reflektierte Elektronenstrahl auf dem (00)-Stab oft nur schlecht auszumachen.

Eine andere Bedeutung des MIP's liegt im Bereich der Simulation. Neben der direkten Bedeutung als Simulationsparameter hat auch hier die Schattenkante bzw. die Schnittlinie S_L , die man mit den Kikuchilinen und dem MIP auch in dem experimentellen Bild bestimmen kann, eine zentrale Bedeutung beim Vergleich von simulierten- und experimentellen Bildern. Neben den Abständen zwischen den Beugungsstrichen muß die RHEED-Simulation auch die Intensitätsmodulation auf den Strichen gemäß dem Experiment richtig wiedergeben. Die Intensitätsmodulation beginnt an der Schattenkante und läuft dann mit größer werdendem Ab-

stand zur Schattenkante im reziproken Raum aus. Ein Vergleichsstartpunkt zwischen Simulation und dem Experiment kann also nur die Schattenkante liefern. Die Auswertung der Linesscans zur Bestimmung der Oberflächenrekonstruktionen, Polytypausbildungen und Morphologieveränderungen der Oberfläche kann auch hier mit der Bestimmung der Schattenkante aus dem Potential verbessert werden.

5.4 Zusammenfassung der experimentellen Ergebnisse

- (1) Der lineare Schwächungsfaktor des Extinktionskoeffizienten für die RHEED-Simulationen von Silizium und Siliziumcarbid beträgt $\zeta = 0,021 \text{ nm}^{-1}$.
- (2) Das mittlere innere Potential (MIP) für die Elektronenbeugung wurde aus den Kikuchilinen für Silizium und 6H-SiC ermittelt. Das experimentell ermittelte Potential beträgt für Silizium 11,7 V und für 6H-SiC 15,4 V. Die Bestimmung des mittleren inneren Potentials von 3C-SiC, AlN und GaN war auf Grund der mangelnden Kristallqualität nicht möglich.
- (3) Es konnte aus der Berechnung des mittleren inneren Potentials eine Vorgehensweise für die Bestimmung des Einfallswinkels ermittelt werden. Damit ist man bei der Auswertung des experimentellen RHEED - Bildes nicht mehr auf die kontrastarme Schattenkante angewiesen.

6 Kristallographische Strukturen der Kristalloberfläche

Die Siliziumoberfläche, die sich bei einem Schnitt durch die Diamantstruktur ergeben würde, ist eher von theoretischer als von praktischer Bedeutung. Diese Oberflächen sind nur zu erzielen, falls im Ultrahochvakuum ein nahezu perfekter Kristall gespalten wird. Sind diese Bedingungen nicht gegeben, so hat Silizium im allgemeinen die Tendenz, sich an der Luft mit einer Siliziumoxidschicht zu überziehen. Diese Schicht ist aber von amorphem Charakter und für eine epitaktische Abscheidung nicht zu verwenden. Die Si-Oberfläche muß also gereinigt werden. Für eine gereinigte Oberfläche im Ultrahochvakuum ergibt sich damit aber das Problem der nicht abgesättigten freien Valenzen an der Oberfläche. Dies ist ein energetisch sehr ungünstiger Zustand. Ist eine gewisse Beweglichkeit der Siliziumatome aufgrund einer bestimmten Temperatur gegeben, so durchläuft die Si-Oberfläche einen Transformationsprozeß. Bei diesem Umwandlungsprozeß wird die Anzahl der freien Valenzen der Oberfläche verringert. Damit wird eine ehemals 'glatte' Oberfläche auf der atomaren Skala Erhebungen und Absenkungen von Atomen durchlaufen. Die Oberfläche ordnet sich neu, man spricht daher von der Rekonstruktion einer Oberfläche. Die Art der Rekonstruktion ist von der kristallographischen Orientierung des Ausgangskristalls, von der Temperatur und von der Art und der Konzentration der Fremdatome auf der Siliziumoberfläche abhängig.

Für die Oberflächenrekonstruktion ergeben sich bezüglich der Anordnung zur Oberfläche des Grundmaterials zwei Fälle. In dem einen Fall ist die Oberflächenstruktur unabhängig von der Unterlage, es liegen keine sich wiederholenden Anordnungen der Oberflächenzellen zur Unterlage vor. Diese Rekonstruktion wird auch als inkommensurabel bezeichnet. In dem anderen Fall, der für die folgenden Abschnitte ausschließlich von Bedeutung ist, kann die periodische Fortsetzung und Lage der Oberflächenelementarzelle mit der Unterlage beschrieben werden. Dieser Rekonstruktionstyp wird mit kommensurabel bezeichnet. Für die Bezeichnung dieser Rekonstruktionstypen hat sich die *Wood Notation* durchgesetzt, die im folgenden erläutert wird.

Sind die Basisvektoren \underline{a}_1 und \underline{a}_2 die Translationsvektoren, die die primitive Einheitszelle des Substrates aufspannen und \underline{e}_1 und \underline{e}_2 die Translationsvektoren der Rekonstruktion, so bildet man die Längenverhältnisse $n = |\underline{e}_1|/|\underline{a}_1|$ und $m = |\underline{e}_2|/|\underline{a}_2|$ und den Winkel ϕ zwischen den Einheitszellen $\{\underline{a}_1, \underline{a}_2\}$ und $\{\underline{e}_1, \underline{e}_2\}$.

Zusammen mit der chemischen Bezeichnung der Unterlage und den Millerschen Indizes h, k und l der Oberfläche erhält man die Bezeichnung der Oberflächenstruktur.

< Material > (hkl) – i(n x m) R ϕ -Fremdatom

Der Platzhalter i steht entweder für p (primitiv) oder c (zentriert) entsprechend wie die Einheitszelle der Rekonstruktion definiert ist. Steht vor der Klammer weder ein p noch ein c ist automatisch die primitive Bezeichnung gemeint. Entsprechendes gilt für den Winkel ϕ . Ist der Winkel Null, dann wird R ϕ ebenfalls weggelassen. In bestimmten Fällen wird die Rekonstruktion durch Fremdatome induziert. Dies wird in der obigen Notation berücksichtigt, indem das chemische Symbol des Fremdatoms an die Rekonstruktionsbezeichnung angehängt wird. In der folgenden Abbildung ist dies an einigen Beispielen erläutert.

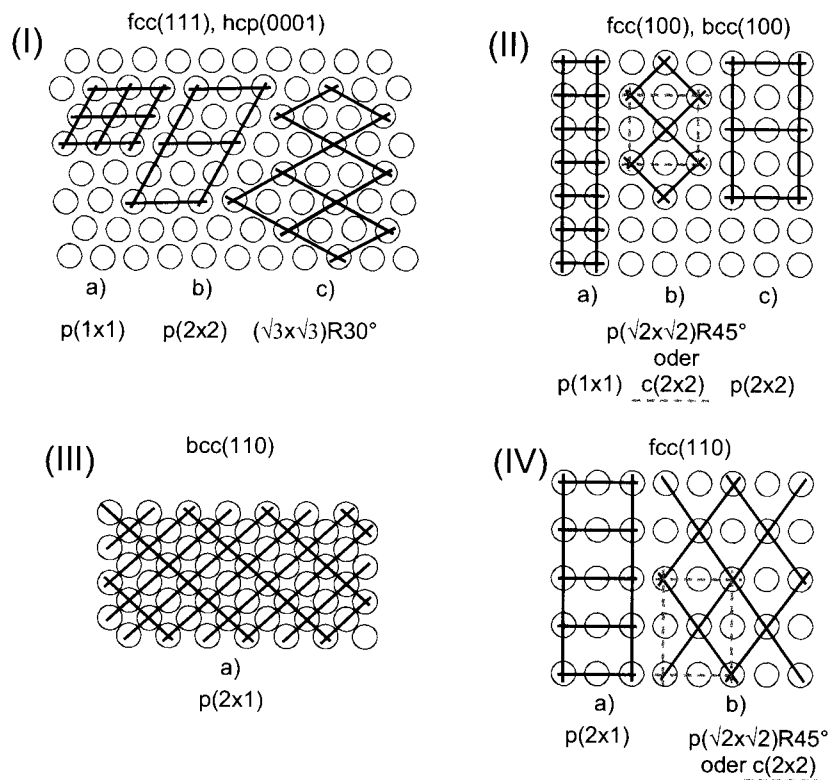


Abb. 6.1: Typische Geometrien von Oberflächenrekonstruktionen, Linien repräsentieren Überstrukturen mit ihren Oberflächenelementarzellen. Die Beschreibungen c(2x2) und p($\sqrt{2} \times \sqrt{2}$)R45° sind einander im kubisch flächenzentrierten (fcc) (100) - und (110) – Oberflächengitter (II, IV) sowie im kubisch raumzentrierten (bcc) (100)-Oberflächengitter äquivalent. Die Bezeichnung (hcp) in (I) steht für hexagonal dichteste Packung [Hen94].

In Abb. 6.1 (IV) bedeutet z.B. p(2x1), daß die Ausrichtung der Oberflächenelementarzelle der Rekonstruktion mit der zweidimensionalen Elementarzelle des Grundgitters identisch ist, aber

einen doppelt so großen Basisvektor besitzt. Da die Überstrukturen größere Elementarzellen als das Grundgitter aufweisen, hängt mit dem bereits diskutierten Bestreben der Festkörperoberfläche zusammen, die Anzahl der freien Valenzen zu minimieren. Der Zusatz c vor der Angabe der Überstruktur gibt an, daß es sich um eine zentrierte Struktur handelt. Unter Ausnutzung dieser Punktsymmetrie können diese Überstrukturen auch mit gegenüber dem Grundgitter um 45° gedrehten kürzeren Basisvektoren beschrieben werden, $\{c(2 \times 2) = p(\sqrt{2} \times \sqrt{2})R45^\circ \text{ in Abb. 6.1 (II) und Abb. 6.1 (IV)}\}$.

Nach der Reinigung der Si-Wafer in dem Wasserstoffplasma und der MBE, wie es in Abschnitt 3.1 beschrieben wurde, stellen sich bestimmte Si-Rekonstruktionen ein. Auf der Si(111)-Oberfläche ist dies die Si(111) (7x7) – und auf der Si(100)-Oberfläche die Si(100) p(2x1)-Rekonstruktion. Die Veränderung dieser Ausgangsrekonstruktionen unter dem Einfluß von Kohlenstoff wird in Kapitel 7 ausführlich behandelt.

7 Kohlenstoff induzierte Rekonstruktionen auf der Si-Oberfläche

Für die Gewinnung von grundlegenden Kenntnissen zur Wechselwirkung von Kohlenstoff mit den Siliziumoberflächen ist es notwendig, die Initialstadien der Karbonisierung *in situ* zu beobachten. Zu diesem Zweck wurden die Karbonisierungsexperimente in der SSMBE und die *in situ* Prozeßbeobachtung mittels RHEED durchgeführt. Das Hauptaugenmerk soll auf die Veränderung der Oberflächenrekonstruktionen während der Interaktion mit Kohlenstoff gerichtet werden. In der Literatur existieren Unklarheiten zu dem Einfluß von Kohlenstoff auf die Rekonstruktionsumbildungen [Mik98]. Desweiteren sind Mißverständnisse bei der Interpretation von Beugungsbildern der kohlenstoffinduzierten Rekonstruktionen vorhanden [Tak96]. Die Existenzbereiche der Kohlenstoff induzierten Rekonstruktionen auf der Si(100)- und der Si(111)-Oberfläche sollen in einem größeren Temperaturbereich (400°C - 1000°C) als derzeit in der Literatur bekannt in Phasendiagrammen zusammengestellt werden. Für den kohlenstoffinduzierten Umbau der Si-Oberfläche ist der Kohlenstoffdiffusionskoeffizient ein entscheidender Parameter. Daher soll die zeitliche Entwicklung der RHEED-Intensität der Rekonstruktionen erstmalig zur Bestimmung des Kohlenstoffdiffusionskoeffizienten auf rekonstruierten Oberflächen benutzt werden. Die Ermittlung der zeitabhängigen RHEED-Intensitätsveränderung der Rekonstruktionen wird auch die Basis für Strukturmodelle der kohlenstoffinduzierten Rekonstruktionen in späteren Abschnitten 8.2 und 8.3 sein. Im folgenden Teil des Kapitels werden zuerst die Transformationen der Rekonstruktionen auf der Si(111)- und anschließend auf der Si(100)-Oberfläche untersucht.

7.1 Wechselwirkung von Kohlenstoff mit der Si(111)-Oberfläche

Die Abbildung 7.1.1 zeigt eine typische Sequenz von RHEED-Bildern während der Karbonisierung mit einem Kohlenstofffluß von $5,55 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ und bei einer Substrattemperatur von 660°C. Nach der Reinigungsprozedur kann mit RHEED die (7x7)-Rekonstruktion detektiert werden. Die Oberfläche wurde dann dem Kohlenstofffluß ausgesetzt. Die Interpretation der je nach Azimut auftretenden Rekonstruktionsstriche wird mit einer Darstellung des reziproken Raumes erleichtert. Mit der Tabelle 7.1.1 ist ein Überblick über die eingestellten Azimute und die zu beobachtenden Strichkonstellationen im Beugungsbild gegeben. Während der Interaktion mit Kohlenstoff durchläuft die Si(111)-Oberfläche eine Transformation die die (7x7)-Rekonstruktion zu einer $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion umbildet. Dies zeigt sich darin, daß in dem [112]-Azimut diese Rekonstruktion zwei Intensitätsstreifen zwischen den Intensitätsstäben des Si-Volumenmaterials in dem RHEED-Bild (Abb. 7.1.1 e) aufweist, aber keine Rekonstruktionsstreifen in dem [110]-Azimut (Abb. 7.1.1 b).

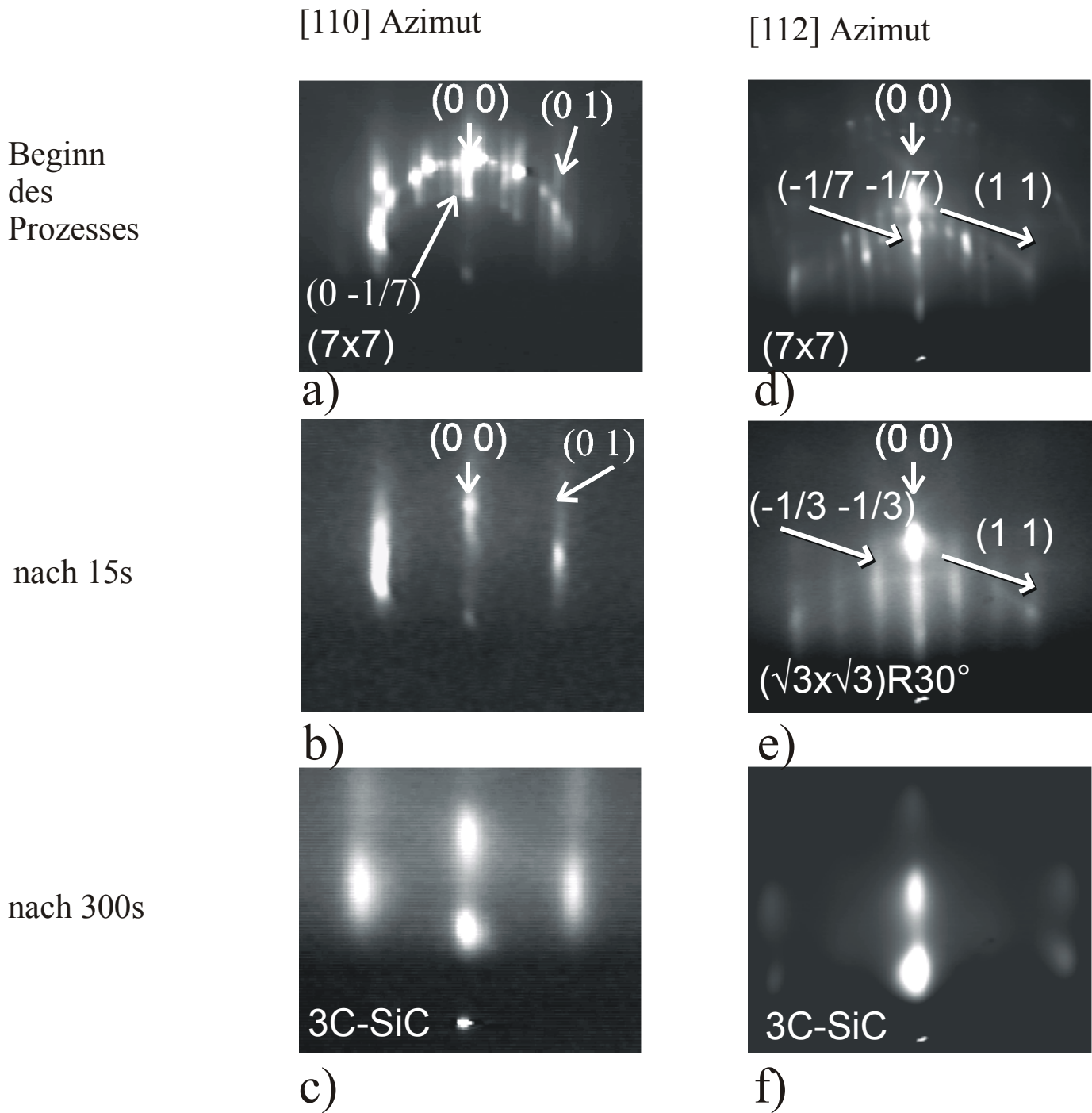


Abb. 7.1.1: RHEED-Bilder (30 kV) der Si(111)-Oberfläche bei einer Prozeßtemperatur von 660°C und einem Kohlenstofffluß von $5,55 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$

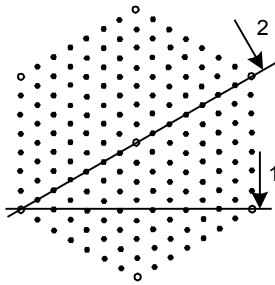
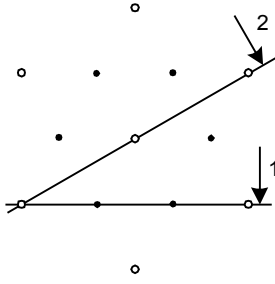
Struktur	Eindomänen	Multidomänen	Reziproker Einheitsvektor einer Eindomänenstruktur
7x7		das gleiche wie Eindomän	$a_s^* = \frac{1}{7} a^*$ $b_s^* = \frac{1}{7} b^*$
$\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ - R30°		das gleiche wie Eindomän	$a_s^* = \frac{2}{3} a^* + \frac{1}{3} b^*$ $b_s^* = -\frac{1}{3} a^* + \frac{1}{3} b^*$

Tabelle 7.1.1: Darstellung des reziproken Raumes für die (7x7)- und der ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30° - C Rekonstruktion in der Si(111) Ebene (Draufsicht). Die mit 1 und 2 bezeichneten Pfeile zeigen die entsprechende Blickrichtung für den [112]- und [110]- Azimut.

Eine fortschreitende Karbonisierung reduziert die Intensität der ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30°-Rekonstruktionsstreifen und Beugungspunkte des 3C-SiC lassen auf einen 3C-SiC-Wachstumsprozeß schließen (Abb. 7.1.1 c, Abb. 7.1.1 f). Um einen detaillierteren Einblick in diesen Wechselwirkungsprozeß des Kohlenstoffs mit der Si(111)-Oberfläche zu bekommen, wurden die aufgenommenen RHEED-Bilder in Echtzeit untersucht. Die zeitliche Entwicklung der RHEED-Intensitäten wurde mit einer Timescan - Untersuchung am Computer durchgeführt. Ein Timescan von der Intensität der Rekonstruktionsstreifen in dem [112]-Azimut ist in Abb. 7.1.2 dargestellt. Während die Intensität der (7x7)-Rekonstruktionsstreifen bei $t_{\text{exi Si}(\frac{1}{7}\frac{1}{7})}$ verschwindet, nimmt die Intensität der ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30° Rekonstruktionsstreifen ab dem Zeitpunkt $t_{\text{i Si}(\frac{1}{3}\frac{1}{3})}$ merklich zu. Der Zeitpunkt $t_{\text{m Si}(\frac{1}{3}\frac{1}{3})}$ charakterisiert das Intensitätsmaximum der ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30° Rekonstruktionsstreifen. Bei fortschreitender Karbonisierungszeit verschwinden auch diese Rekonstruktionsstreifen bei $t_{\text{r Si}(\frac{1}{3}\frac{1}{3})}$. Der (111) SiC-Beugungspunkt ist der erste sichtbare Hinweis für eine SiC-Bildung. Daher wurde dieser RHEED-Spot für die Auswertung der SiC-Entwicklung auf der Si(111)-Oberfläche in Abb. 7.1.2 ausgewählt.

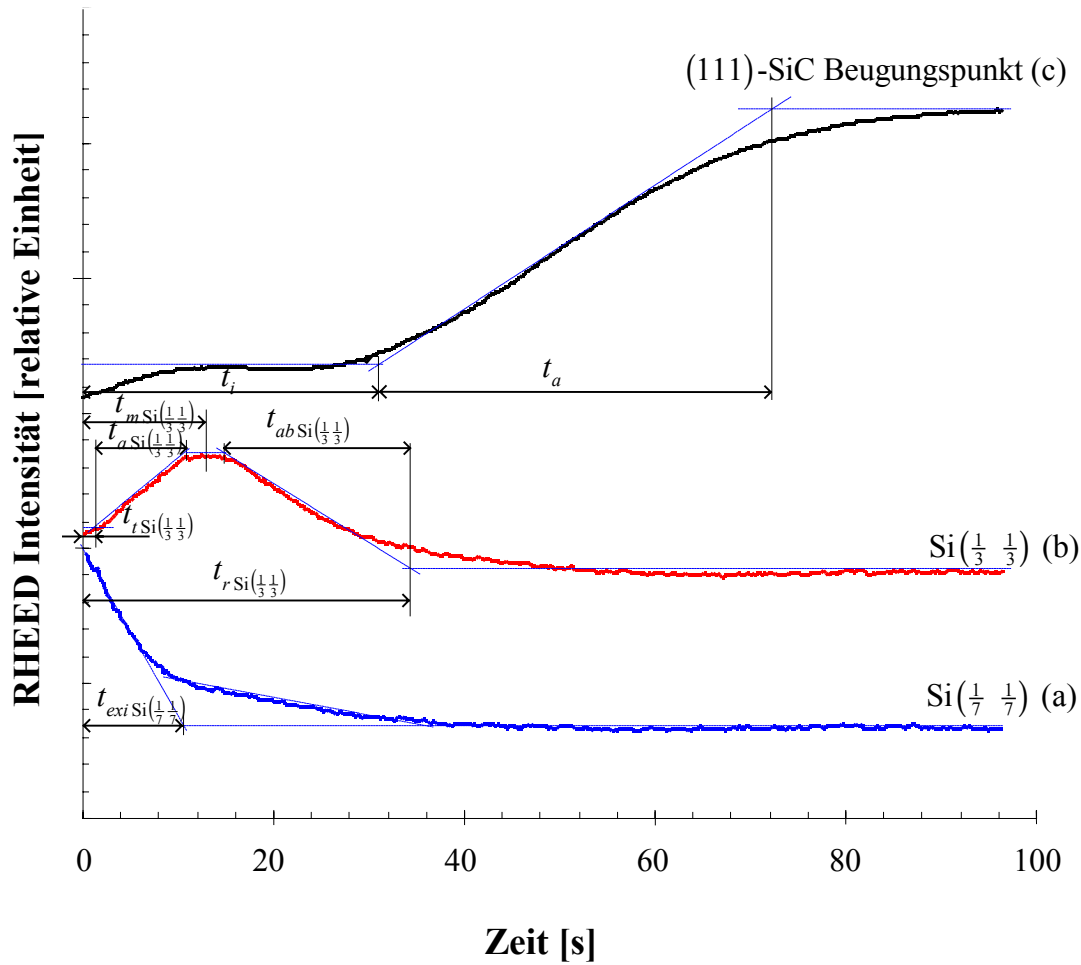


Abb. 7.1.2: RHEED-Intensitätsverläufe bei der Karbonisierung (SSMBE) der Si(111)-Oberfläche bei einer Prozeßtemperatur von 660°C und einer C-Rate 3, der (7x7)-Rekonstruktion (a), der ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30°-C-Rekonstruktion (b) und des 3C-SiC-Beugungspunktes (c)

Als Beginn für die SiC - Bildung wurde der Zeitpunkt t_i festgelegt. Die Zeiten $t_{\text{exi Si}(\frac{1}{7} \frac{1}{7})}$, $t_{\text{t Si}(\frac{1}{3} \frac{1}{3})}$, $t_{\text{m Si}(\frac{1}{3} \frac{1}{3})}$, $t_{\text{r Si}(\frac{1}{3} \frac{1}{3})}$ und t_i wurden für unterschiedliche Temperaturen und Raten bestimmt. Die Transformation der Si(111)-Oberfläche von der (7x7)-Rekonstruktion zur Kohlenstoff induzierten ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30°-Rekonstruktion unmittelbar vor der SiC - Bildung spielt eine entscheidende Rolle für die Initialbildung des SiC. Die Oberflächenenergie von der Silizium induzierten ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30°-Rekonstruktion ist nur geringfügig höher als die von der Si(111) (7x7)-Oberfläche [Nor89, Van89, Mea89]. Daher muß in dem hier diskutierten Fall der Kohlenstoff induzierten Rekonstruktion der exakte Mechanismus hinsichtlich des substitutio- nellen- und des interstitiellen Einbaus bzw. eine Mischung aus beiden Möglichkeiten disku- tiert werden. Deswegen ist die Kenntnis über die Kohlenstoffmenge, die für die vollständige Transformation der Si(111)-Oberfläche in eine ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30°-Rekonstruktion notwendig ist,

für diese Diskussion von Bedeutung. In Abb. 7.1.3 ist die abgeschiedene Kohlenstoffmenge während der Ausbildung des $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktionsmaximums in dem Temperaturbereich 400°C – 850°C dargestellt.

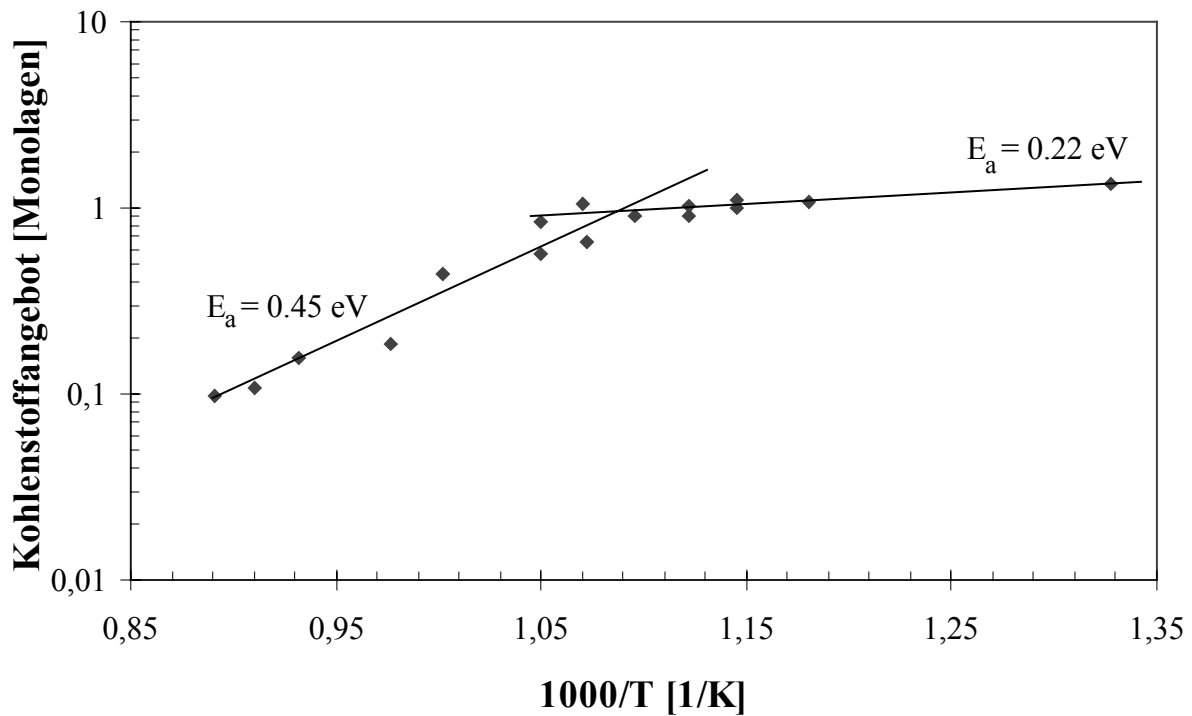


Abb. 7.1.3: Zeitpunkt des Maximums für einen Kohlenstofffluß von $5,55 \cdot 10^{13}$ Atome $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ umgerechnet in Kohlenstoffmonolagen als Funktion der inversen Temperatur für die Si(111) $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion

In der logarithmischen Arrhenius-Darstellung (Abb. 7.1.3) können die experimentellen Werte mit zwei Aktivierungsenergien zwischen 400°C - 660°C und 660°C - 850°C angefitet werden. In dem ersten Temperaturbereich erreichen die RHEED-Rekonstruktionsstreifen bei näherungsweise einer Monolage ihr Intensitätsmaximum. Wenn für die atomare Konfiguration der Kohlenstoff induzierten $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion die gleiche Geometrie wie für die anderen Gruppe IV Elemente Sn [Gan91] und Pb [Nog88] auf Si(111) angenommen wird, so wären 1/3 Monolage für den strukturellen Aufbau der Rekonstruktion notwendig. Da zum Zeitpunkt des Intensitätsmaximums noch keine SiC-Bildung mit RHEED erkennbar ist, muß zwangsläufig ein Teil des Kohlenstoffs in die oberflächennahen Siliziumschichten diffundiert sein. In dem ersten Temperaturbereich errechnet sich die Aktivierungsenergie mit

0,22 eV. In dem höheren Temperaturbereich (660°C - 850°C) tritt das Intensitätsmaximum zwischen 1 und 0,1 Monolagen Kohlenstoff auf, wobei die Aktivierungsenergie 0,45 eV beträgt. Es ist davon auszugehen, daß das gleichzeitige Auftreten von SiC-Beugungspunkten bei höheren Temperaturen in dem RHEED-Bild ein Hinweis darauf ist, daß sich die $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion nicht mehr auf der gesamten Si(111)-Oberfläche ausbildet und so das Intensitätsmaximum bei kleineren Bedeckungsgraden auftritt. Dadurch wird eine höhere Aktivierungsenergie der Rekonstruktion vorgetäuscht. Da der Kohlenstoff bei den höheren Temperaturen auch direkt an der Oberfläche mit Silizium reagiert, steigt der Anteil Kohlenstoff, der in tiefere Schichten diffundiert, nicht in dem Maße an wie der thermisch aktivierte Diffusionsprozeß vermuten lassen würde. Die Existenz der (7x7)-Rekonstruktion, der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion und der Bildung von SiC hängt gemäß Abb. 7.1.4. von der Temperatur und der Kohlenstoffmenge ab, welche auf der Oberfläche abgeschieden ist.

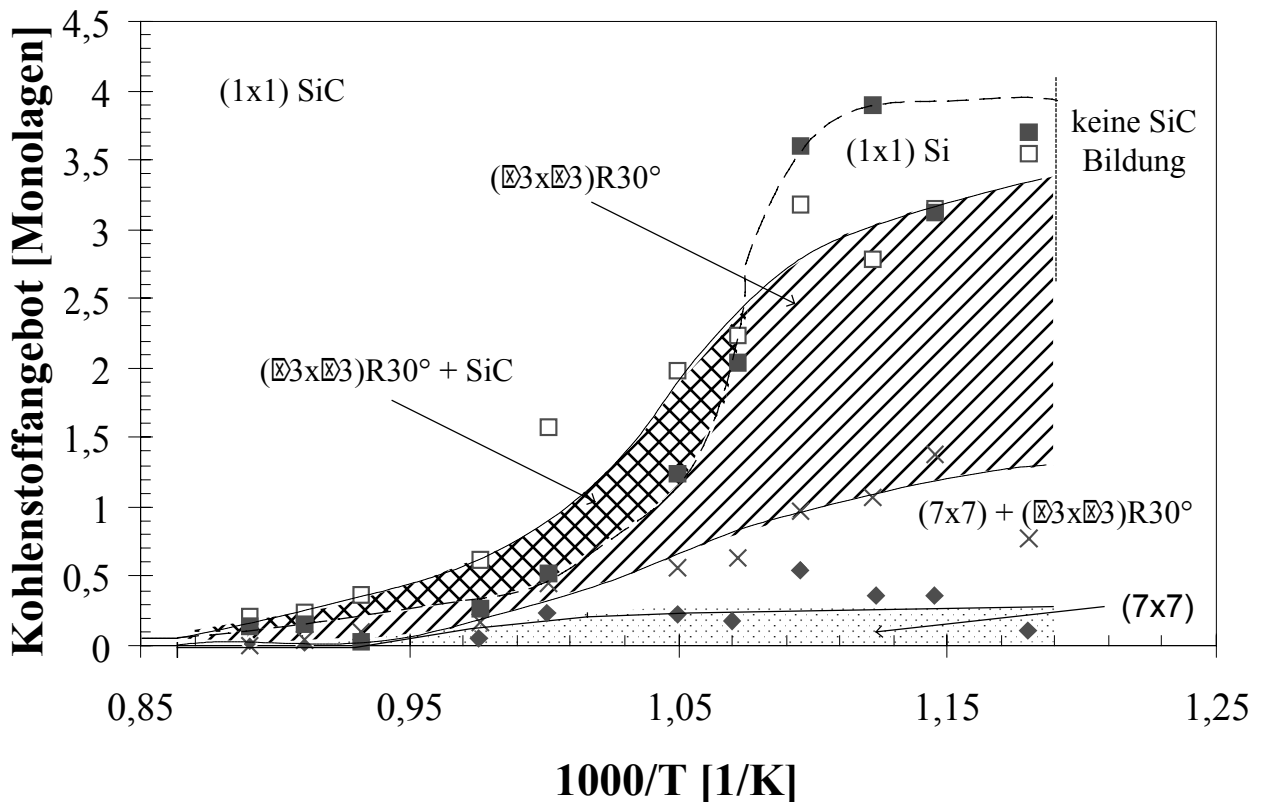


Abb. 7.1.4: Phasendiagramm für die Karbonisierung der Si(111)-Oberfläche

Die ermittelten charakteristischen Zeiten sind mit dem jeweils eingestellten Kohlenstofffluß multipliziert worden, um die Kohlenstoffmenge zu ermitteln.

In dem Temperaturbereich 574°C - 660°C konnte eine bestimmte Abfolge der Transformation der Si(111)-Oberfläche während der Wechselwirkung mit Kohlenstoff festgestellt werden. Während die (7x7)-Rekonstruktion verschwand, stieg die Intensität der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion an. Bei näherungsweise 3 Monolagen Kohlenstoff verschwand auch diese Rekonstruktion und bei 3,5 Monolagen Kohlenstoff setzte für RHEED sichtbar die SiC-Bildung ein. In dem Temperaturbereich 660°C - 750°C konnte die SiC-Bildung vor dem vollständigen Verschwinden der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30° Rekonstruktion beobachtet werden. Bei höheren Temperaturen wurde der Beginn der SiC - Bildung schon bei einer Bedeckung von weniger als 0,2 Monolagen Kohlenstoff detektiert. Das bedeutet, daß der Kohlenstoff direkt an der Oberfläche mit dem Silizium reagieren muß und der Kohlenstoff steht dann nicht mehr für die $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion zur Verfügung, so daß der Anteil der Oberfläche, die den Rekonstruktionswechsel durchführen kann, kleiner ist.

Die Temperaturabhängigkeit der beobachteten Rekonstruktionen und der Bildung von SiC bei einem Kohlenstofffluß von $5,55 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ kann mit folgendem Schema zusammengefaßt werden:

$$T_{\text{Substrat}} < 470^\circ\text{C} \quad : \quad (7 \times 7)\text{Si} \rightarrow \text{Kohlenstoff}$$

$$470^\circ\text{C} \leq T_{\text{Substrat}} \leq 660^\circ\text{C}: \quad (7 \times 7)\text{Si} \rightarrow (\sqrt{3} \times \sqrt{3}) \text{ R30}^\circ \rightarrow (1 \times 1)\text{SiC},$$

$$660^\circ\text{C} < T_{\text{Substrat}} \leq 850^\circ\text{C}: \quad (7 \times 7)\text{Si} \rightarrow \{(\sqrt{3} \times \sqrt{3}) \text{ R30}^\circ + (1 \times 1)\text{SiC}\} \rightarrow (1 \times 1)\text{SiC}$$

$$T_{\text{Substrat}} > 850^\circ\text{C}: \quad (7 \times 7)\text{Si} \rightarrow (1 \times 1)\text{SiC}$$

Es existieren in der Literatur nur einige Arbeiten, die die Wechselwirkung von Kohlenstoff mit der Si(111)-Oberfläche untersuchen. Während der Karbonisierung der Si(111)-Oberfläche mit Ethylen hat Charig et al. [Cha69] eine $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion beobachtet. Für den Fall der Transformation der Siliziumoberfläche in der SSMBE wurde in Cimala et al. [Cim98b] die Abb. 7.1.3 veröffentlicht. Derzeit ist in der Literatur keine genaue Kenntnis über die atomare Struktur der Si(111) $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30° - C-Rekonstruktion oder dem Existenzbereich vorhanden.

Miki et al. [Mik98] ist der Meinung, daß diese Rekonstruktion in dem Temperaturbereich 400°C - 600°C unabhängig von der Kohlenstoffanreicherung an der Oberfläche ist. In einer anderen Veröffentlichung [Tha96] wird die Möglichkeit diskutiert, daß Silizium eine metastabile $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion in dem Temperaturbereich 550°C - 570°C induziert. Für die Silizium - Deposition wurde in dieser Arbeit Silan verwendet. Daher muß bei diesen Experimenten noch die Rolle des Wasserstoffs geklärt werden. Die in [Rog97] durch-

geführten Experimente könnten diesen Verdacht erhärten. In diesem Artikel wurde eine Si(111)-Oberfläche mit atomarem Wasserstoff geätzt, auf 560°C aufgeheizt und anschließend auf Raumtemperatur abgekühlt. Die Untersuchung mit STM ergab eine $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion nach dieser Oberflächenbehandlung. Im Gegensatz zu den Aussagen von Miki et al. [Mik98] lassen die vorgestellten experimentellen Ergebnisse den Schluß zu, daß die $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion in dem Temperaturbereich von 400°C - 825°C durch eine Induzierung mit Kohlenstoff hervorgerufen werden kann. Der Einfluß von Wasserstoff kann in der SSMBE ausgeschlossen werden, da hier elementarer Kohlenstoff verwendet wird.

Für die andere Gruppe IV - Elemente konnte ebenfalls eine $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion in der Literatur beobachtet werden. In der Veröffentlichung [Gan91] wurde eine vollständige Transformation der Si(111)-Oberfläche bei einer Bedeckung mit 1/3 ML Pb ermittelt. Dieser Bedeckungsgrad mit Blei konnte von [Nog88] bestätigt werden. Für Zinn und Germanium ist die $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion in [Kub90] beobachtet worden. Für die Gruppe III Elemente In, B, Al und Ga konnte die $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion ebenfalls in der Literatur gefunden werden. In der Arbeit von [Woi93] wurde ein Wert von 1/3 ML Indium für diese Rekonstruktion ermittelt. Als atomare Position in der Rekonstruktion wurde die T4 - Geometrie bevorzugt. Für das kleinere Boratom, welches bei einem Bedeckungsgrad von 1/3 ML die $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion induziert, konnte [Won95] die S5 - Position ermitteln. Yoshimi Horio et al [Hor98] konnten auf der Si(111)-Oberfläche eine Aluminium induzierte $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion nachweisen. Eine quantitative Untersuchung von [Zot95] ergab bei 600°C eine optimale Bedeckung von 1/3 ML Aluminium. Analog zu dem Indium wurde für die atomare Position eine T4 - Position favorisiert. Eine analoge Struktur wurde für die Gallium induzierte $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion in [Lif94] detektiert. Gemäß der Auflistung der bisher experimentell gefundenen $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktionen auf der Si(111)-Oberfläche scheint diese Oberflächengeometrie typisch für einwertige, zweiwertige, dreiwertige und vierwertige Elemente zu sein. Die atomaren Strukturen dieser Rekonstruktionen sind im wesentlichen noch nicht bekannt.

Mit den Untersuchungen in Abb. 7.1.3 ergab sich eine Kohlenstoffbedeckung von rund 1 ML Kohlenstoff für das Maximum der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion. Eine Diskussion möglicher Strukturvorschläge mit RHEED, basierend auf diesem Ergebnis, findet man in Abschnitt 8.2.

7.2 Wechselwirkung von Kohlenstoff mit der Si(100)-Oberfläche

In Analogie zu der Vorgehensweise bei der Karbonisierung der Si(111)-Oberfläche wird die Transformation der Si(100)-Oberfläche unter dem Einfluß des Kohlenstoffs untersucht. In Abb. 7.2.1 ist eine typische Sequenz von RHEED-Bildern während der Karbonisierung mit einem Kohlenstofffluß von $5,7 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ und einer Substrattemperatur von 660°C wiedergegeben. In der Tabelle 7.2.1 ist zum besseren Verständnis der im RHEED-Bild auftretenden Strichkonfigurationen der reziproke Raum dieser Rekonstruktionen in Draufsicht mit Andeutung des [100]- und des [110]-Azimutes dargestellt. Nach der Reinigungsprozedur konnte zwischen den Si-Volumenstrichen in dem RHEED-Bild in dem [110]-Azimut (Abb. 7.2.1 a) ein zusätzlicher Rekonstruktionsstrich beobachtet werden. Zur gleichen Zeit konnte in dem [100]-Azimut kein zusätzlicher Intensitätsstreifen beobachtet werden (Abb. 7.2.1 e). Dieses RHEED-Rekonstruktionsstreifenmuster ist mit einer Doppel-Domänen Si(100) p(2x1)-Rekonstruktion zu erklären (Tabelle 7.2.1). Nach dem Start des Karbonisierungsprozesses sind im [100]-Azimut jeweils drei Rekonstruktionsstriche zwischen den RHEED-Si-Volumenstrichen zu erkennen (Abb. 7.2.1 f). In der anderen Hauptrichtung, dem [110]-Azimut, ist weiterhin nur ein Rekonstruktionsstrich zwischen den Si-Volumenstrichen zu erkennen (Abb. 7.2.1 b). Die Auswertung von Abständen der RHEED-Intensitätsstreifen von Zwischenrichtungen läßt den Schluß zu, daß es sich um eine Si(100) c(4x4)-Rekonstruktion handelt. Eine weitere Wechselwirkung der Si(100)-Oberfläche mit dem Kohlenstofffluß führt zu einer Veränderung des Intensitätsverhältnisses zwischen den Rekonstruktionsstreifen im [100]-Azimut (Abb. 7.2.1 f). Die Intensität von dem (1/2 1/2)-Strich (der mittlere von den drei Rekonstruktionsstreifen) verschwindet bei weiterer Karbonisierung (Abb. 7.2.1 g) langsamer als die der (1/4 1/4)- und (3/4 3/4)-RHEED-Streifen. In dem [110]-Azimut kann der einzelne Rekonstruktionsstrich (0 1/2) weiterhin beobachtet werden (Abb. 7.2.1 c). Die RHEED-Bilder Abb. 7.2.1 c und Abb. 7.2.1 g werden mit den Rekonstruktionsstreifen einer Si(100) p(2x2)-Rekonstruktion erklärt, gemäß Tabelle 7.2.1. Eine Si(100) c(2x2)-Rekonstruktion kann diese in RHEED beobachtete Bildsequenz nicht erklären. Für die Herausbildung dieser Rekonstruktion hätte die Intensität des Rekonstruktionsstreifens (0 1/2) in dem [110]-Azimut sich in dem gleichen Maße verringern müssen, wie die der (1/4 1/4)- und (3/4 3/4)-Streifen in dem [100]-Azimut. Daher ist es ungewöhnlich, daß Takaoka et al [Tak96] bei der Reaktion der Si(100)-Oberfläche mit Ethan eine Si(100) c(2x2)-Rekonstruktion beobachtet haben wollen. Eine weitere Interaktion mit Kohlenstoff führt zu 3C-SiC Wachstum, wie es aus den Beugungspunkten in den RHEED-Bildern zu entnehmen ist (Abb. 7.2.1 d und Abb. 7.2.1 h). Für eine detaillierte Untersuchung sind die RHEED - Bilder des [110]-Azimuts (Abb. 7.2.2 a) und des [100]-Azimuts (Abb. 7.2.2 b) in Echtzeit ausgewertet worden.

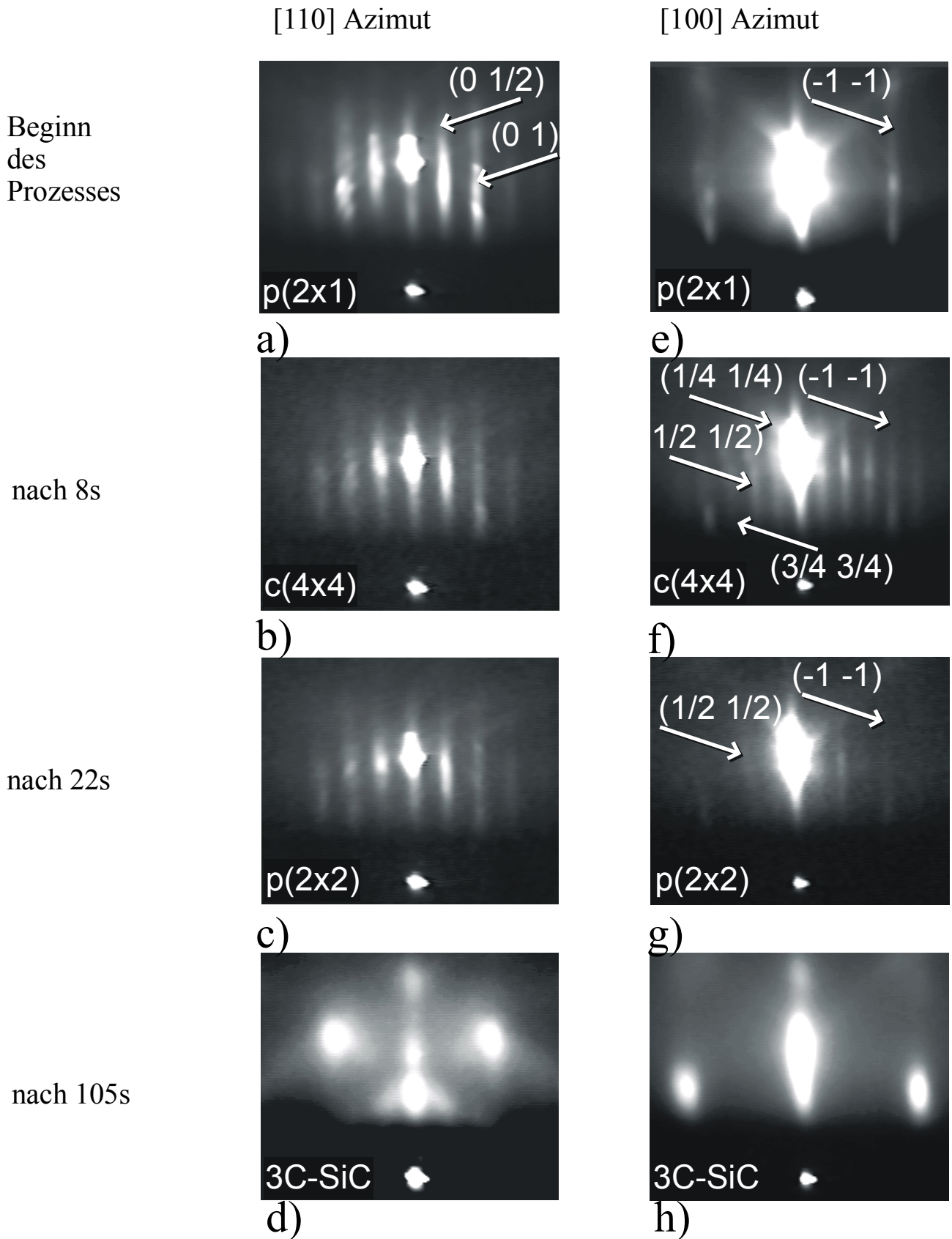


Abb. 7.2.1: RHEED-Bilder der Si(100)-Oberfläche bei einer Prozeßtemperatur von 660°C und einer C-Rate 3

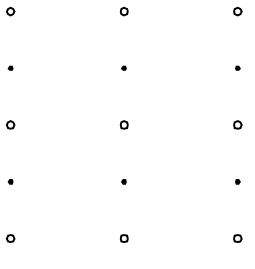
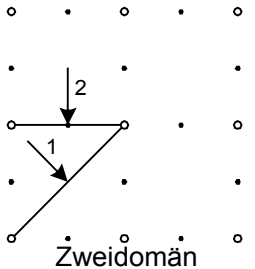
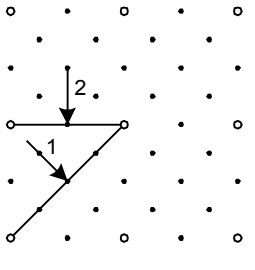
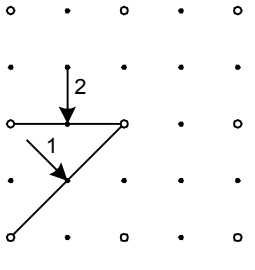
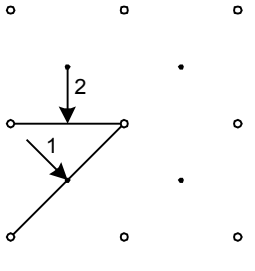
Struktur	Eindomänen	Multidomänen	Reziproker Einheitsvektor einer Eindomänenstruktur
p(2x1)		 Zweidomän	$a_s^* = a^*$ $b_s^* = \frac{1}{2} b^*$
c(4x4)		das gleiche wie Eindomän	$a_s^* = \frac{1}{2} a^*$ $b_s^* = \frac{1}{4} a^* + \frac{1}{4} b^*$
p(2x2)		das gleiche wie Eindomän	$a_s^* = \frac{1}{2} a^*$ $b_s^* = \frac{1}{2} b^*$
$\sqrt{2} \times \sqrt{2}$ $- R45^\circ$ $\hat{=} c(2x2)$		das gleiche wie Eindomän	$a_s^* = \frac{1}{2} a^* + \frac{1}{2} b^*$ $b_s^* = \frac{1}{2} a^* - \frac{1}{2} b^*$

Tabelle 7.2.1: Prinzipdarstellung des reziproken Raumes für die Rekonstruktionen auf der Si(100) – Oberfläche in Draufsicht. Die mit 1 und 2 bezeichneten Pfeile zeigen die Blickrichtung für den [100]- und [110]-Azimut.

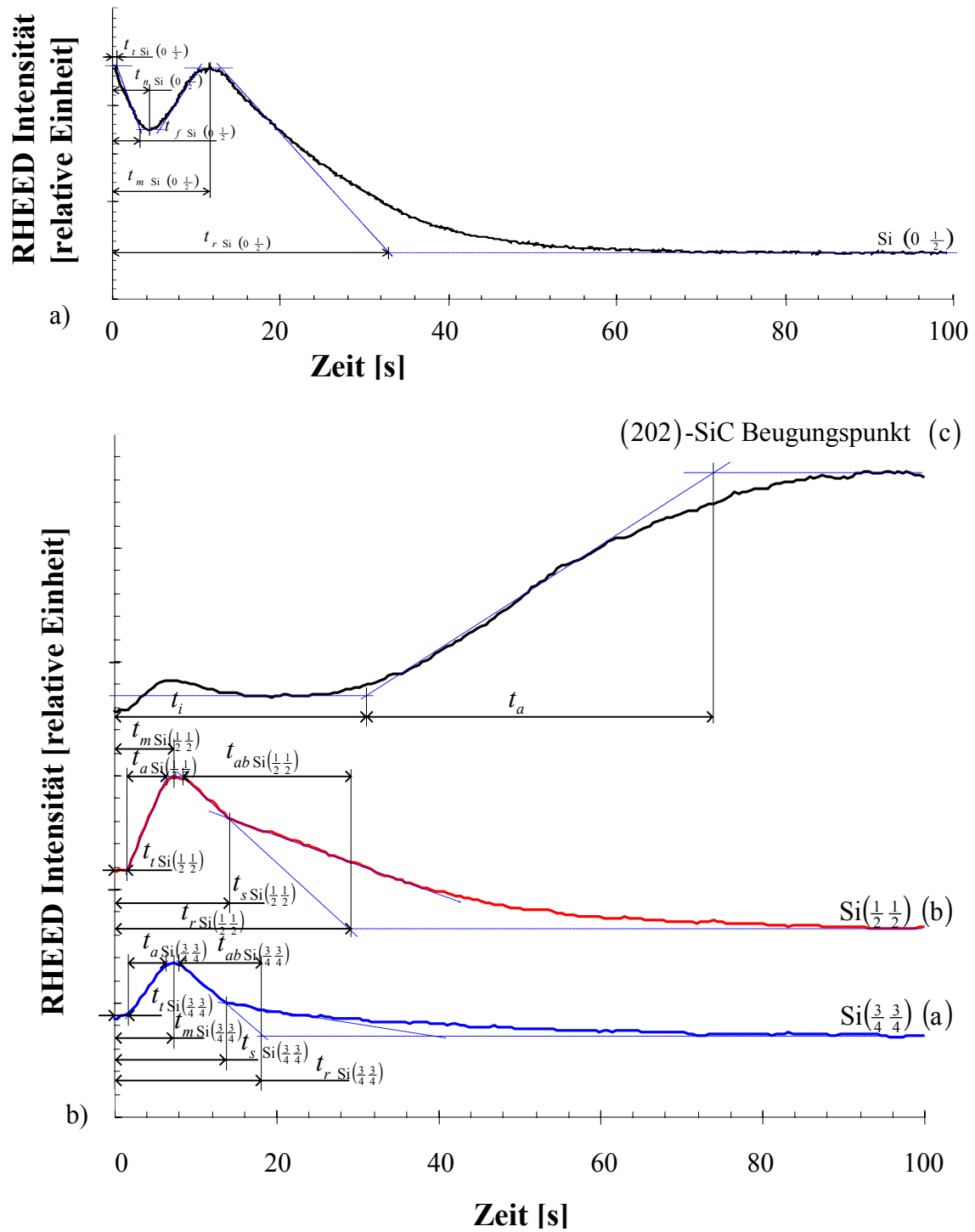


Abb. 7.2.2: Zeitliche Entwicklung des RHEED-Intensitätsverlaufes bei der Karbonisierung (SSMBE) der Si(100)-Oberfläche, Prozeßtemperatur 660°C, Kohlenstofffluß von $5,7 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$,

- a) [110] Azimut Si(0 1/2) Beugungstreifen
- b) [100] Azimut SiC Beugungspunkt, Si(1/2 1/2)- und Si(3/4 3/4)-Beugungstreifen

Ein Timescan für die Intensität im [100]-Azimut (Abb. 7.2.2 b) kann durch charakteristische Punkte auf der Zeitachse beschrieben werden. In diesem Azimut ist sowohl der Si(1/2 1/2)-Strich als auch der Si(3/4 3/4)-Strich der Rekonstruktion untersucht worden. Der Si(3/4 3/4)-Strich liefert Informationen über die c(4x4)-Rekonstruktion. Der Si(1/2 1/2)-Strich enthält hingegen zusätzlich noch die Information über die p(2x2)-Rekonstruktion. Für die Ermittlung des Existenzbereiches der c(4x4)-Rekonstruktion wird daher der Si(3/4 3/4)-Strich herangezogen. Nach dem Beginn der Wechselwirkung des Kohlenstoffs mit der Si(100)-Oberfläche beginnt die Intensität der Si(100) c(4x4) nach der Totzeit bei $t_{\text{Si}(\frac{3}{4}\frac{3}{4})}$, und erreicht ein Maximum bei $t_{\text{m Si}(\frac{3}{4}\frac{3}{4})}$ und bei weiterer Karbonisierung fällt sie ab und erreicht bei $t_{\text{r Si}(\frac{3}{4}\frac{3}{4})}$ die Rauschgrenze. Die charakteristischen Zeitpunkte des anderen Beugungsstriches Si(1/2 1/2) lauten für die Totzeit $t_{\text{Si}(\frac{1}{2}\frac{1}{2})}$, für das Maximum $t_{\text{m Si}(\frac{1}{2}\frac{1}{2})}$ und für die Rauschgrenze $t_{\text{r Si}(\frac{1}{2}\frac{1}{2})}$. Bei einer weiteren Wechselwirkung mit Kohlenstoff, d.h. längeren Prozeßzeiten, kann SiC-Bildung detektiert werden. Der erste mit RHEED sichtbare Hinweis ist der Beugungspunkt (202). Die Intensitätsbeobachtung dieses Punktes liefert den Startpunkt der SiC-Bildung mit t_{i} in Abb. 7.2.2 b. Der andere wichtige Azimut zur Beurteilung der Transformationsprozesse auf der Si(100)-Oberfläche ist der [110]-Azimut (Abb. 7.2.2 a). In dem [110]-Azimut haben die Si(100) p(2x1)- und die Si(100) c(4x4)-Rekonstruktion die gleichen Streifenkonfigurationen im RHEED-Bild gemäß Tabelle 7.2.2 welches mit der Literaturstelle [Lif94] bestätigt werden kann. Dies ist wichtig für die Interpretation der Intensitätskurve. In der Veröffentlichung [Hat 96] sind die (0 1/2) - Streifen in dem [110]-Azimut nur im Zusammenhang mit der Si(100) p(2x1)-Rekonstruktion diskutiert worden. Dieses zeitlich gestaffelte Zusammenspiel der Rekonstruktionen zeigt sich auch im Timescan (Abb. 7.2.2 a). Die Intensität des Rekonstruktionsstreifens fällt nach Beginn der Karbonisierung bis zu dem Punkt $t_{\text{n Si}(0\frac{1}{2})}$ ab und anschließend, nach einer weiteren Wechselwirkung der Oberfläche mit dem Kohlenstoff, steigt die Intensität des Rekonstruktionsstreifens bis zum Maximum bei $t_{\text{m Si}(0\frac{1}{2})}$ wieder an. Anschließend fällt die Intensität bis zur Rauschgrenze bei $t_{\text{r Si}(0\frac{1}{2})}$ ab. Die Menge an elementarem Kohlenstoff, die für eine kohlenstoffinduzierte Rekonstruktion in dem Temperaturbereich von 575°C - 900°C notwendig ist, wurde noch nicht veröffentlicht. In Abb. 7.2.3 ist die Kohlenstoffmenge, die für die Herausbildung des Intensitätsmaximums der Si(100)c(4x4) notwendig ist, temperaturabhängig dargestellt. Der Arrhenius Plot liefert eine Aktivierungsenergie von 0,06 eV/Atom. Das Intensitätsmaximum liegt in dem Bereich 575°C - 900°C zwischen 1 und 0.6 Monolagen Kohlenstoff. Die Strukturvorschläge für die kohlenstoffinduzierte Si(100) c(4x4)-Rekonstruktion beinhalten unterschiedliche Mengen Kohlenstoff, 0,25 ML [Ide92], 0,4 ML [Lei99], 0,7 ML [Pan 85, Wan87]. Da ein Teil des angebotenen Kohlenstoffs substitutionell in die obersten Lagen eingebaut wird und ein weiterer Teil in tiefere Lagen diffundiert, kann mit der in Abb. 7.2.3 ermittelten Kohlenstoffmenge für das RHEED-Intensitätsmaximum alleine noch kein Strukturvorschlag für die Si(100) c(4x4)-

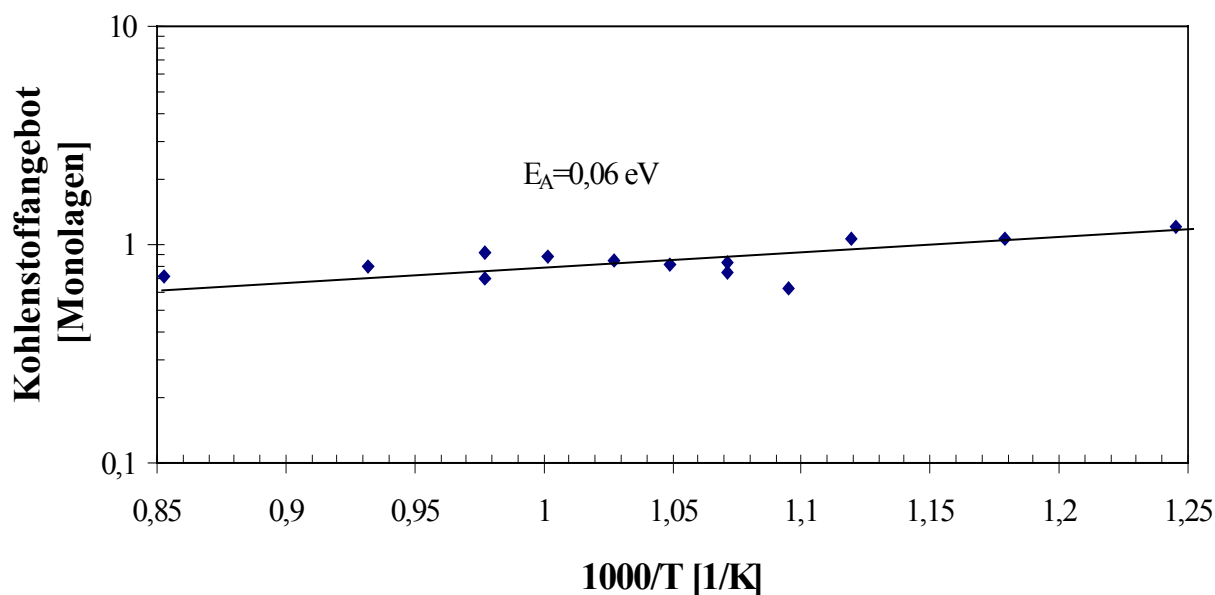


Abb. 7.2.3: Zeitpunkt des Maximums für einen Kohlenstofffluß von $5,7 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ umgerechnet in Kohlenstoffmonolagen als Funktion der inversen Temperatur für die beobachtete Si(100) c(4x4) – C-Rekonstruktion

Rekonstruktion bevorzugt werden. Diese Fragestellung ist Thema in einem gesonderten Abschnitt 8.3.

Entsprechend der Betrachtung bei der Si(111)-Oberfläche ist das Auftreten der Rekonstruktionen sowohl abhängig von der Temperatur als auch von der Kohlenstoffmenge, welche auf der Oberfläche abgeschieden ist (Abb. 7.2.4). In den Experimenten konnte die Si(100) c(4x4) Rekonstruktion in einem weiten Temperaturbereich (575°C - 900°C) beobachtet werden. Die Umwandlung der p(2x1) zur c(4x4) wurde mit den RHEED-Bildern des [100]-Azimuts der Zeit $t_{\text{Si}(\frac{3}{4}\frac{3}{4})}$ und des [110] Azimuts der Zeit $t_{\text{Si}(\frac{1}{2}\frac{1}{2})}$ mit näherungsweise dem gleichen Kohlenstoffangebot von 0,2 Monolagen Kohlenstoff in dem Temperaturbereich 575°C – 900°C bestimmt. Aus Abb. 7.2.4 folgt weiter, daß die Si(100) c(4x4)-Rekonstruktion bis zu einem Kohlenstoffangebot von 3 Monolagen Kohlenstoff bei 575°C und bis zu 0,8 Monolagen Kohlenstoff bei 900°C existiert. Die Zeit zwischen dem Prozeßstart und dem Verschwinden der RHEED-Streifen (1/2 1/2) und (3/4 3/4) in dem [100] Azimut $t_{\text{Si}(\frac{1}{2}\frac{1}{2})}$ und $t_{\text{Si}(\frac{3}{4}\frac{3}{4})}$ variiert in dem Temperaturbereich 575°C - 800°C. Diese mit den Timescans quantitativ erfaßten Intensitätsvariationen sind neben den RHEED - Bildern Abb. 7.2.1 c und Abb. 7.2.1 g ein Hinweis auf die Existenz der Si(100) p(2x2)-Rekonstruktion.

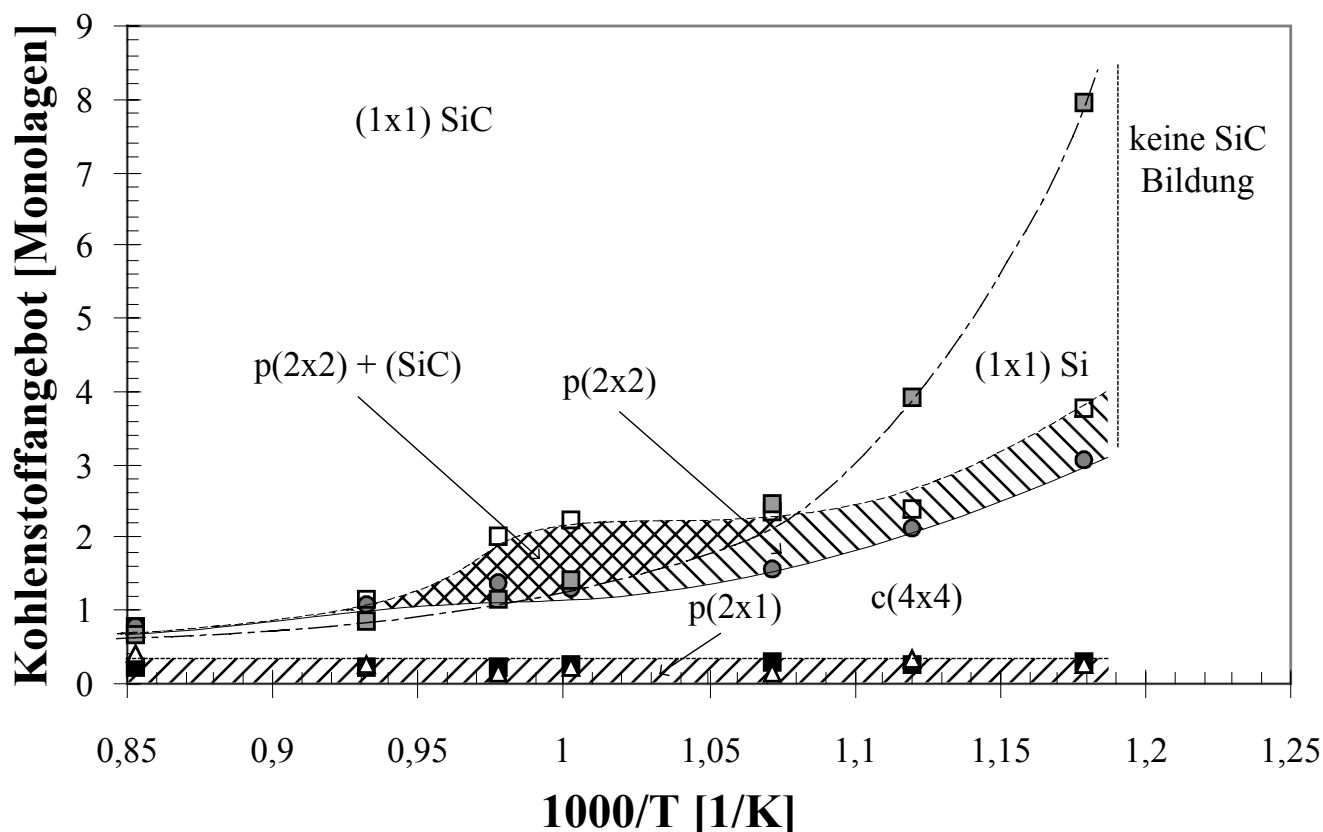


Abb. 7.2.4: Phasendiagramm für die Karbonisierung der Si(100)-Oberfläche bei einem Kohlenstofffluß von $5,7 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$

Aus der Abb. 7.2.4 ist zu erkennen, daß die Si(100) p(2x2)-Rekonstruktion bei einer Kohlenstoffbedeckung zwischen 1,5 und 2,5 Monolagen Kohlenstoff auftritt. Der Existenzbereich der Kohlenstoff induzierten Si(100) p(2x2)-Rekonstruktion, aus RHEED-Bildern ermittelt, ist in der Literatur bisher noch nicht veröffentlicht worden. In einigen Arbeiten [Kus97, Lüt98, Tak96] wird davon berichtet, daß nach der Herausbildung der Si(100) p(2x2) eine Transformation in eine Si(100) p(2x1) zu beobachten war. Für die Erkennbarkeit der Rekonstruktion in den Timescans müßte die Zeitdifferenz $t_{\text{r Si}(0\frac{1}{2})}$ länger sein als die von $t_{\text{r Si}(\frac{1}{2}\frac{1}{2})}$, was aber in den Experimenten keine signifikante Zeitdifferenz ergab. Die Temperaturabhängigkeit der beobachteten Rekonstruktionen und der Bildung von SiC bei einem Kohlenstofffluß von $5,7 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ läßt sich schematisch wie folgt darstellen:

$T_{\text{Substrat}} < 530^\circ\text{C}$	$:(2x1)\text{Si} \rightarrow \text{SiC} + \text{Kohlenstoff}$
$530^\circ\text{C} \leq T_{\text{Substrat}} < 575^\circ\text{C}$	$:(2x1)\text{Si} \rightarrow \text{c}(4x4)\text{Si} \rightarrow (1x1)\text{SiC}$
$575^\circ\text{C} \leq T_{\text{Substrat}} \leq 660^\circ\text{C}$	$:(2x1)\text{Si} \rightarrow \text{c}(4x4)\text{Si} \rightarrow \text{p}(2x2)\text{Si} \rightarrow (1x1)\text{SiC}$
$660^\circ\text{C} < T_{\text{Substrat}} \leq 800^\circ\text{C}$	$:(2x1)\text{Si} \rightarrow \{\text{c}(4x4)\text{Si} + (1x1)\text{SiC}\} \rightarrow \{\text{p}(2x2)\text{Si} + (1x1)\text{SiC}\}$
$800^\circ\text{C} < T_{\text{Substrat}} \leq 900^\circ\text{C}$	$:(2x1)\text{Si} \rightarrow \text{c}(4x4) \rightarrow (1x1)\text{SiC}$

Bei 950°C konnte keine Si(100) c(4x4)-Rekonstruktion mit RHEED beobachtet werden. In der Literatur sind zur Si(100)-Oberfläche bezüglich der Wechselwirkung mit elementarem Kohlenstoff, Ethen und Propan einige Angaben zu finden. In [She98] wurde in einem Temperaturbereich zwischen 550°C und 650°C eine Oberflächentransformation der Si(100) p(2x1) - zur Si(100) c(4x4)-Rekonstruktion während der Wechselwirkung mit Kohlenstoff im Submonolagenbereich von einer Kohlenstoff-Feststoffquelle beobachtet. Für die Ausbildung der c(4x4)-Rekonstruktion war eine Kohlenstoffbedeckung von 0,21 bis 0,32 Monolagen (ML) erforderlich. In einer Untersuchung von Lüth et al. [Lüt98] wurde bei 600°C die vollständige Umwandlung der Si(100)-Oberfläche in eine c(4x4)-Rekonstruktion bei einer Bedeckung zwischen 1/4 - 1/3 ML Kohlenstoff beobachtet. Eine weitere Bedeckung der Oberfläche mit Kohlenstoff in dem Bereich zwischen 1/2 und 1 ML führte zu einem Wechsel der c(4x4)- zu einer p(2x1)-Rekonstruktion.

Auch bei der Interaktion der Si(100)-Oberfläche mit Ethen wurde ein Rekonstruktionswechsel von einigen Autoren beobachtet. In [Tak96] ist die c(4x4)-Rekonstruktion in einem Temperaturbereich zwischen 575°C - 675°C bei der Wechselwirkung mit Ethen beobachtet worden. Die Kohlenstoffbedeckung wird bei 575°C mit 0,17 - 0,25 ML angegeben. Das Low Energy Electron Diffraction (LEED) - Bild identifizierte bei 0,33 ML einen Wechsel von der c(4x4)- zur p(2x1)-Rekonstruktion mit schwachen c(2x2) Beugungspunkten und mit einem weiteren Kohlenstoffangebot (0,57 ML) eine p(2x1) Rekonstruktion. In anderen Veröffentlichungen konnte keine c(2x2)-Rekonstruktion während der Wechselwirkung mit Kohlenstoff gefunden werden. Es konnte mit RHEED eindeutig eine p(2x2)-Rekonstruktion identifiziert werden. Die Angaben in dieser Literaturstelle können damit nicht gestützt werden.

Die Umwandlung der c(4x4)- in eine p(2x2)- und anschließend in eine p(2x1)-Rekonstruktion mit wachsender Ethen-Exposition ist ebenfalls von [Kus97] mit LEED in dem Temperaturbereich 570°C - 680°C beobachtet worden. In [Ike98] ist bei 850°C nur die p(2x1)-Rekonstruktion unabhängig von der Ethen-Exposition mit LEED gefunden worden. Desweiteren wird in diesem Artikel die Möglichkeit diskutiert, daß der Wasserstoff beim Zerfall des Ethens mittels Ätzprozeß die Siliziumoberfläche zu einer c(4x4)-Rekonstruktion umbildet. Die Aktivierungsenergie der c(4x4) während der Wechselwirkung von gekracktem Propan mit der Si(100)-Oberfläche beträgt laut [Hat96] 0,68 eV/Atom. Die zeitliche Entwicklung der Rekonstruktion ist mit RHEED beobachtet worden und die Existenz der c(4x4) liegt gemäß einer Abschätzung der Bedeckung zwischen 0,1 – 0,25 Monolagen Kohlenstoff. Da RHEED einen wesentlich größeren Teil der Oberfläche und des oberflächennahen Bereiches erfaßt als LEED, oder direkt abbildende Instrumente wie z.B. STM und REM sind die Aussagen zur Oberflächentransformation mit RHEED repräsentativer. Daher können eigentlich nur die RHEED-Auswertungen miteinander verglichen werden. Bis auf die Literaturstelle

[Hat96] sind alle aufgeführten Untersuchungen im Zusammenhang mit der Karbonisierung der Si(100)-Oberfläche mit LEED oder mit dem direkt abbildenden Instrument STM durchgeführt worden. Zu dem mit RHEED beobachteten Existenzgebiet der $c(4 \times 4)$ in [Hat96] ist auf den Einfluß des Wasserstoffs auf die Rekonstruktionsbildung hinzuweisen. In [Tak96] ist die Möglichkeit diskutiert worden, daß Wasserstoff eine wichtige Rolle während der Transformation der Si(100) $p(2 \times 1)$ - in eine Si(100) $c(4 \times 4)$ -Oberfläche in der Gas-Source-Molecular-Beam-Epitaxie (GSSMBE) spielt. Daher ist es möglich, daß in der (GSSMBE) bei niedrigeren Kohlenstoffbedeckungen als in der SSMBE eine Si(100) $c(4 \times 4)$ -Rekonstruktion ausgebildet wird.

7.3. Vergleich zwischen den Kohlenstoff induzierten Rekonstruktionen auf der Si(100)- und der Si(111)-Oberfläche

Die Si(111) (7×7) und die Si(100) $p(2 \times 1)$ stellen die Ausgangsrekonstruktionen nach dem Reinigungsprozeß dar. Für diese Rekonstruktionen sind deutlich unterschiedliche Stabilitäten bei der Karbonisierung festzustellen. Die Si(100) $p(2 \times 1)$ verschwindet in dem Temperaturbereich $575^\circ\text{C} - 900^\circ\text{C}$ näherungsweise bei dem gleichen Kohlenstoffangebot von 0,2 Monolagen Kohlenstoff, wohingegen das Verschwinden der Si(111) (7×7) deutlich temperaturabhängig ist. Bei 620°C sind es 1 Monolage Kohlenstoff und bei 725°C sind es 0,5 Monolagen Kohlenstoff. Eine weitere Temperaturerhöhung auf 750°C sorgt dafür, daß die (7×7) schon bei 0,2 Monolagen Kohlenstoff verschwindet.

Eine ähnliche Aussage kann auch zu der Stabilität der kohlenstoffinduzierten Rekonstruktionen gemacht werden. In dem Temperaturbereich $575^\circ\text{C} - 900^\circ\text{C}$ erreicht die Si(100) $c(4 \times 4)$ ihr Intensitätsmaximum bei 1 – 0,6 Monolagen Kohlenstoff. Entsprechend gering ist die Aktivierungsenergie mit $< 0,1$ eV/Atom. Das Intensitätsmaximum der Si(111) $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ $R30^\circ$ -Rekonstruktion ist in dem Temperaturbereich $400^\circ\text{C} - 680^\circ\text{C}$ bei annähernd 1 Monolage Kohlenstoff erreicht und die hieraus resultierende Aktivierungsenergie liegt bei 0,22 eV/Atom. In dem höheren Temperaturbereich $680^\circ\text{C} - 850^\circ\text{C}$ erreicht die Si(111) $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ $R30^\circ$ -Rekonstruktion das Intensitätsmaximum zwischen 1 und 0,1 Monolagen Kohlenstoff, was entsprechend mit einer höheren Aktivierungsenergie von 0,45 eV/Atom verbunden ist. Sowohl bei der $c(4 \times 4)$ - als auch bei der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ $R30^\circ$ -Rekonstruktion ist die Kohlenstoffmenge, die für den strukturellen Aufbau gemäß Modellen aus der Literatur notwendig ist, geringer als die experimentell, während des Intensitätsmaximums, ermittelte Kohlenstoffmenge. Ein Teil des überschüssigen Kohlenstoffs wird während des Prozesses in tiefere Lagen diffundieren. Ein anderer Teil des Kohlenstoffs könnte mit Silizium eine Art Kohlenstoff-Silizium-Mischphase bilden in der Form $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$. Der Einfluß dieser Mischphase auf die Kohlenstoff induzierten Rekonstruktionen ist derzeit noch nicht behandelt worden.

7.4 **Oberflächendiffusionskoeffizient des Kohlenstoffs auf rekonstruierten Oberflächen**

Der Diffusionskoeffizient des Kohlenstoffs für den Volumen-Diffusionsprozeß innerhalb des Siliziums ist in der Literatur umfangreich untersucht. Mit Infrarot (IR)-Messungen wurde u. a. die Diffusion des atomaren Kohlenstoffs innerhalb der $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ Mischphase untersucht [Ino87, Yos91]. In der Arbeit von [New61] wurde aus der Ermittlung des Diffusionsprofils von radioaktivem Kohlenstoff mit einem hoch orts aufgelösten Geiger-Müller-Zähler auf den Diffusionskoeffizienten geschlossen. Im Gegensatz dazu existieren zum C-Oberflächendiffusionskoeffizienten in der Literatur derzeit keine experimentellen Untersuchungen. Für die Aktivierungsenergien E_A des Oberflächendiffusionskoeffizienten des Kohlenstoffs auf der Si(100)-Oberfläche existiert eine ab initio Simulation [Liu00]. Für Platzwechselprozesse über größere Distanzen entlang der Dimerreihe ist ein Wert von $E_A = 1,48$ eV und quer zu den Dimeren ein Wert von $E_A = 2,45$ eV mit dieser ab initio Rechnung bestimmt worden. Eine vergleichende Simulation zu den Aktivierungsenergien der Si(111) und der Si(100)-Oberfläche liegt nicht vor.

Für die experimentelle Ermittlung des Oberflächendiffusionskoeffizienten des Kohlenstoffs auf rekonstruierten Oberflächen bietet sich die Auswertung der RHEED-Intensität der kohlenstoffinduzierten Rekonstruktionen an. Die Transformation der Rekonstruktionen reagiert sehr empfindlich auf Wechselwirkungen mit Kohlenstoff (Abschnitt 7.1 und 7.2). Die Eindiffusion von Kohlenstoff in die tieferen Schichten des Siliziums, das heißt die Volumendiffusion, kann während der Ausbildung der kohlenstoffinduzierten Rekonstruktion bei Temperaturen $< 680^\circ\text{C}$ vernachlässigt werden. Der andere Vorteil bei dieser Auswertetechnik ist die *in situ* Analyse in der SSMBE. Die Fremdeinflüsse durch andere Adsorbate auf die Rekonstruktion werden so weitestgehend vermieden.

Für die Bestimmung des Diffusionskoeffizienten wird auf ein Modell von [Bra98] zurückgegriffen, was noch in geeigneter Weise zu modifizieren ist. Dieses Modell beschreibt auf der GaN(100)-Oberfläche eine Phasenumbildung von der (2x2)- zur c(2x2)-Rekonstruktion deren maximale Ausbildung bei 0,5 ML Ga- bzw. 1 ML Ga-Bedeckung beobachtet wird. Die Modellierung der Rekonstruktionsänderung berücksichtigt sowohl die Depositionsrates von Stickstoff als auch die von Gallium. Für die Galliumatome auf der GaN-Oberfläche gibt es in dem Modell neben dem Einbau in die Rekonstruktion noch die Möglichkeit der Desorption, die von der Konzentration von überschüssigem Ga auf der Oberfläche abhängt und desweiteren noch einen Desorptionsmechanismus, der mit dem Bedeckungsgrad der Oberfläche mit der galliumreichen c(2x2)-Rekonstruktion verknüpft ist. Die Unterscheidung zwischen den Desorptionsmechanismen hängt mit der Tendenz zur tropfenförmigen

gen Zusammenlagerung von überschüssigem Gallium auf der GaN-Oberfläche zusammen. Die Diffusionsrate des Galliums erscheint in dem Modell als Fitparameter.

Von diesem Modell ausgehend ist eine Modifizierung in der Weise vorgenommen worden, daß nur der Aufbau einer Rekonstruktion betrachtet wird und nicht gleichzeitig der Abbau einer anderen Rekonstruktion. In dem hier betrachteten Fall verschwinden die Si-Ausgangsrekonstruktionen, die Si(111) (7x7) und die Si(100) (2x1) und es bilden sich die kohlenstoffinduzierten Rekonstruktionen Si(111)($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$)R30° und Si(100) c(4x4) heraus. Wenn sich ein bestimmter Oberflächenbereich mit Kohlenstoff angereichert hat, so kann sich auf diesem nicht die (7x7)-Rekonstruktion zurückbilden, falls sich der Kohlenstoffgehalt innerhalb einer Größenordnung ändern würde. Damit liegt im Gegensatz zu dem von [Bra98] betrachteten Fall keine Gleichgewichtsreaktion zwischen zwei Rekonstruktionen vor und es ist demzufolge in diesem Fall möglich, den Aufbau der kohlenstoffinduzierten Rekonstruktion isoliert zu betrachten. Die thermisch begünstigte Desorption, wie sie in dem ursprünglichen Modell von [Bra98] berücksichtigt wird, existiert für den Kohlenstoff während der Karbonisierung nicht. Die Sublimationstemperatur von Kohlenstoff liegt bei 3370°C (Tabelle 1.1). Eine Desorption von Kohlenstoff bei 680°C kann also vernachlässigt werden. Ein Verschwinden von Kohlenstoff von den oberflächennahen Lagen, die bei einer Rekonstruktionsumbildung der Oberfläche involviert sind, kann nur durch Diffusion in tiefere Lagen erfolgen. Für den Zeitraum der Rekonstruktionsausbildung bis zum Intensitätsmaximum der Rekonstruktion wird gemäß [Ter95] davon ausgegangen, daß der Kohlenstoff aufgrund der hohen Löslichkeit in den oberen Lagen nur unwesentlich ins Si-Volumenmaterial hinein diffundiert. Die zweite Komponente bei der Reaktion, in diesem Fall das Silizium, ist im Vergleich zum Kohlenstoff im Überschuß vorhanden und die Si-Oberflächen-Diffusion läuft um einen Faktor 200 schneller ab als die von Kohlenstoff [Liu00]. Das Silizium stellt also keine begrenzende Größe bei der Oberflächentransformation dar und damit können alle Ausdrücke, die die zweite Komponente, den Stickstoff in dem ursprünglichen Modell von [Bra98] berücksichtigen, weggelassen werden. Da hier nicht die Konkurrenzreaktion zwischen zwei Kohlenstoff-induzierten Rekonstruktionen betrachtet werden soll, sondern die Temperatur - und Ratenabhängigkeit einer Rekonstruktion, erhält man folgendes Modell:

$$\frac{d}{dt}[\Theta_{BC}(t)] = j_c(\alpha_C - \Theta_{BC}) + D_C \frac{(\alpha_C - \Theta_{BC})}{\Theta_{BC}} \cdot n_C \quad (7.4.1)$$

$$\frac{d}{dt}[n_C(t)] = j_c \cdot \Theta_{BC} - D_C \cdot \frac{(\alpha_C - \Theta_{BC})}{\Theta_{BC}} \cdot n_C \quad (7.4.2)$$

Das Modell wird durch die gekoppelten Differentialgleichungen 1. Ordnung wiedergegeben. Der Bedeckungsgrad Θ_B der Oberfläche mit der kohlenstoffinduzierten Rekonstruk-

tion korreliert mit einer bestimmten Menge α_C [0...1ML] Kohlenstoff in dem RHEED-Intensitätsmaximum der Rekonstruktion. Die temperaturabhängige Menge an Kohlenstoff, die für die Herausbildung des RHEED-Intensitätsmaximums der Rekonstruktion notwendig ist, ist in Abb.7.1.3 und 7.2.3 dargestellt. In der Differentialgleichung (7.4.1) und (7.4.2) werden diese Größen zu Θ_{BC} verknüpft:

$$\Theta_{BC} = \alpha_C \cdot \Theta_B \quad (7.4.3)$$

Die zeitliche Entwicklung des Rekonstruktionsaufbaus wird von der Diffusionsrate D_C des Kohlenstoffs und dem Fluß j_C bestimmt. Die Gleichung (7.4.1) beschreibt die Zunahme des Anteils der Si-Oberfläche, auf der sich die Rekonstruktion ausgebildet hat. Die zeitliche Entwicklung der Menge Kohlenstoff $n_C(t)$, die für diese Oberflächenumwandlung zur Verfügung steht, wird in der Gleichung (7.4.2) beschrieben und bewegt sich in dem betrachteten Zeitintervall zwischen [0..1ML]. Die Größe n_C beschreibt damit eine Art C-Reservoir, was von dem C-Fluß j_C aufgebaut wird. Neben dem C-Fluß wird die zeitliche Entwicklung des Rekonstruktionsaufbaus von der Diffusionsrate D_C des Kohlenstoffs bestimmt.

Die Verfügbarkeit des mit dem C-Fluß eingebrachten Kohlenstoffs n_C , für den Aufbau der Rekonstruktion, soll wegen der Bedeutung für das Modell noch mit einigen Betrachtungen erläutert werden. Während des Abbaus der Ausgangsrekonstruktionen, der (7x7)- und der (2x1)-Rekonstruktion, reichern sich die oberflächennahen Lagen mit Kohlenstoff an. Mit eigenen XPS – Messungen konnte während des Maximums der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$ Rekonstruktion in den oberen vier Doppellagen 1ML Kohlenstoff nachgewiesen werden. In der Veröffentlichung von [Kos98] ist die Kohlenstoffverteilung in den oberen 4 Lagen der Si(100)-Oberfläche während der Ausbildung der c(4x4)-Rekonstruktion mit X-Ray Photoelectron Diffraction (XPD) untersucht worden. Es wurde für den Kohlenstoff eine $Si_{1-x}C_x$ Mischphase gefunden, in der die Kohlenstoffatome substitutionell in das Si-Gitter eingebaut werden. Die mit XPD gefundene Verteilung der Kohlenstoffatome lautete für die erste, zweite, dritte und vierte Lage 0.3, 0.23, 0.15 und 0.08 Monolagen Kohlenstoff. Diese starke Anreicherung von Kohlenstoff in den oberen Lagen ist in theoretischen Arbeiten von [Rüc94] und [Ter95] vorhergesagt worden. In [Ter95] wird davon ausgegangen, daß die Löslichkeit des Kohlenstoffs in den obersten vier Lagen um vier Größenordnungen, aufgrund der Dimerisierung der Si(100) Oberfläche, gesteigert ist. In [Rüc94] wurde für das x in der $Si_{1-x}C_x$ Mischphase ein Wert von 0.2 angegeben und desweiteren mit ab initio Berechnungen gezeigt, daß diese Mischphase stabiler ist als isolierte nicht substitutionell eingebaute Kohlenstoffatome.

Nach der Inkubationszeit für die C-induzierten Rekonstruktionen $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$ und c(4x4) hat das Rate-Zeitprodukt bei 660°C einen Wert von näherungsweise 0,4 ML Kohlenstoff. Während des Erreichens der RHEED- Maximalintensität der C-induzierten Rekonstruk-

tionen steigt dieses Rate-Zeitprodukt auf über 1 ML Kohlenstoff auf der Si(111)- und 0,8 ML Kohlenstoff auf der Si(100) – Oberfläche an. Es soll davon ausgegangen werden, daß der angebotene Kohlenstoff bis zum Erreichen des Intensitätsmaximums der Rekonstruktion fast vollständig in den oberen vier Lagen lokalisiert ist. Der Rekonstruktionsaufbau wird damit zum einen durch den stressinduzierenden Effekt der Si-Gitterverspannung und zum anderen durch den substitutionellen Einbau von Kohlenstoff in die Rekonstruktion bestimmt. Die Summe aus beiden Anteilen kann aus der Ermittlung des Intensitätsmaximums der Rekonstruktion geschlossen werden (Abschnitt 7.1. und 7.2). Aus diesen Darstellungen kann der Schluß gezogen werden, daß für eine vollständige Bedeckung der Oberfläche mit der Si(111)($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$)R30° 1 ML und für die Si(100) c(4x4) eine Bedeckung von 0,8 ML notwendig ist. Diese C-Bedeckungswerte sind in der Differentialgleichungen (7.4.1 und 7.4.2) mit α_C berücksichtigt. Mit der Kenntnis über den Bedeckungsgrad der Oberfläche mit der Rekonstruktion und der Kohlenstoffmenge für das Maximum der Rekonstruktion kann die Diffusionsrate D_C mit dem Differentialgleichungsmodell ermittelt werden. Aus dieser Diffusionsrate kann in Abhängigkeit von der Domänengröße L auf den Diffusionskoeffizienten D geschlossen werden:

$$D = L^2 \cdot D_C \quad (7.4.4)$$

Für die Auswertung der RHEED-Rekonstruktionsstriche kann die Intensität I und die Strichbreite $w(t)$ bei der halben Intensität (FWHM) genutzt werden. Von einer Variation der Breite $w(t)$ eines Rekonstruktionsstriches kann auf die Veränderung der Domänengröße L geschlossen werden. In der Theorie zur Röntgenbeugung würde sich die Anzahl der Oberflächenelementarzellen N in einer Domäne umgekehrt proportional zur Peakbreite bzw. zur Breite eines Beugungsstreifens verhalten. In der Literatur ist dies auch als Scherrer- Gleichung bekannt [Joo89]. Dieser Zusammenhang wird nun auf die Elektronenbeugung übertragen. Der Zusammenhang zwischen der RHEED-Intensität der Beugungsstreifen und des Oberflächenbedeckungsgrades Θ_B der Si-Oberfläche mit der Rekonstruktion kann aus der Literatur entnommen werden. Da mit der Rekonstruktion eine zweidimensionale Struktur vorliegt, ergibt sich gemäß [Bra98, Gif95, Hen94, Kit96] eine Proportionalität zwischen dem Quadrat des Bedeckungsgrades Θ_B und der Intensität:

$$I \sim \Theta_B^2 \quad (7.4.5)$$

Um den Bedeckungsgrad der Oberfläche mit einer Rekonstruktion zu ermitteln, ist es notwendig, die Intensitäten von unterschiedlichen Rekonstruktionen miteinander zu vergleichen. Ein Vergleich setzt die Kenntnis der jeweiligen Domänengröße voraus. In der Veröf-

fentlichung von [Tri94] wird eine Proportionalität zwischen der Peakintensität I bei der zweidimensionalen Phasenumbildung der Oberfläche und dem zugehörigen zeitabhängigen Strukturfaktor $S_F(q,t)$ angegeben:

$$I \sim S_F(q,t) = S_F(0,t) F(q/w(t)) \quad (7.4.6)$$

Die Größe $S_F(0,t)$ beschreibt den Strukturfaktor für das Zentrum der Brillouinzone und F ist eine universelle Funktion, die das Verhältnis der zeitabhängigen Halbwertsbreite des Peaks $w(t)$ zu dem zugehörigen Wellenvektor q in der Brillouinzone berücksichtigt. Die entscheidende Aussage von Gleichung (7.4.6) lautet, daß die Peakintensität von unterschiedlichen Rekonstruktionen bei einem gleichen Verhältnis zwischen dem q -Vektor und der Halbwertsbreite w identisch ist. Die Halbwertsbreite des Peaks ist bei einer gleichen Anzahl N von Oberflächenelementarzellen in einer Domäne gleich [Hen94]. In dem Ansatz Gl.(7.4.6) wird nur die mittlere Größe der Domänen berücksichtigt. Für eine größere Anzahl X von Domänen, wie sie mit RHEED erfaßt wird, muß dieser Ansatz sinngemäß erweitert werden. Das Produkt aus X und N entspricht der Oberflächenbedeckung mit der jeweiligen Rekonstruktion. Für den Fall das die kohlenstoffinduzierten Rekonstruktionen im Gegensatz zu der Ausgangsrekonstruktion nicht die gesamte Oberfläche bedecken, kann man davon ausgehen, daß die RHEED-Intensität sich gemäß Gleichung (7.4.5) proportional zu dem Quadrat der Oberfläche verhält. Damit ist eine Ermittlung des Bedeckungsgrades einer Rekonstruktion anhand des Intensitätsvergleiches von Rekonstruktionspeaks möglich. Der Ansatz für die Intensitätsbeschreibung lautet damit:

$$I \sim (X \cdot N)^2 \quad (7.4.7)$$

Die Vorgehensweise für die Auswertung der experimentellen Ergebnisse der Rekonstruktionen auf der Si(100)- und Si(111)-Oberfläche wird im folgenden Unterabschnitt erläutert.

Die Si(111) (7x7)-Rekonstruktion wird mit einer geeignet gewählten Prozeßtemperatur, die die kleinste Halbwertsbreite FWHM des (2/7 2/7)-Strichs liefert, als Bezug gewählt. Die maximale Domänengröße L ist durch die Terrassengröße vorbestimmt. Hier wird die Annahme getroffen, daß die Domänengröße der Terrassengröße entspricht. Diese wurde durch AFM-Messungen ermittelt und betrug 100 nm. Desweiteren wird angenommen, daß die (7x7)-Ausgangsrekonstruktion nach dem Reinigungsprozeß in dem Plasmamodul die gesamte Oberfläche bedeckt. Gemäß den Betrachtungen in [Hen94] kann man die Proportionalität zwischen dem Quadrat der Domänengröße und dem FWHM ausnutzen. Aus dem Breitenverhältnis des (1/3 1/3)-Striches zu dem (2/7 2/7)-Strich kann unter Berücksichtigung der jeweiligen Oberflächenelementarzellengröße der (7x7)- bzw. der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$ -Rekonstruktion

auf die Domänengröße L , bzw. die Anzahl der Oberflächenelementarzellen in der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$ -Rekonstruktion geschlossen werden. Die $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$ -Rekonstruktion mit einem ähnlichen q -Wert für den $(1/3 \ 1/3)$ -Rekonstruktionsstrich müßte bei einer gleichen Bedeckung gemäß der Gleichung (7.4.7) die gleiche Intensität liefern. Ist dies nicht der Fall, kann aus dem Intensitätsverhältnis auf das Verhältnis der Bedeckungen zwischen der (7×7) - und $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$ -Rekonstruktion geschlossen werden. Diese Vorgehensweise hat den Vorteil, daß die Abhängigkeit der Domänengröße, von der Temperatur und von dem C-Fluß, mit berücksichtigt wird. Für die $c(4 \times 4)$ Rekonstruktion auf der Si(100)-Oberfläche kann anhand des Halbwertsbreitenverhältnisses zwischen der (7×7) und der $c(4 \times 4)$ ebenfalls auf die relative Domänengröße, unter Einbeziehung der unterschiedlichen Größen der Oberflächenelementarzellen, geschlossen werden. Es soll auch in diesem Fall davon ausgegangen werden, daß die Ausgangsrekonstruktion Si(100) $p(2 \times 1)$ nach dem vorangegangenen Reinigungsprozeß die gesamte Oberfläche bedeckt. Dadurch ist es möglich über einen Intensitätsvergleich der Rekonstruktionen mit der Gleichung (7.4.7) auf den Bedeckungsgrad der Si(100) $c(4 \times 4)$ -Rekonstruktion zu schließen.

Zur Lösung der gekoppelten Differentialgleichungen (7.4.1 und 7.4.2) wurde ein vordefiniertes Paket zur Lösung numerischer Differentialgleichungen des Mathematikprogramms ' Mathematica ' verwendet. Dieses Paket arbeitet sowohl mit einer nicht steifen Adams-Methode als auch mit einer steifen Gear-Methode [Wol97]. Die numerische Lösung der Differentialgleichungen liefert die Bedeckung Θ_{BC} . Die Totzeit t_{tot} der Rekonstruktionsausbildung wird von dem Differentialgleichungssystem (7.4.1 und 7.4.2) über die Randbedingungen des Kohlenstoffangebotes $n_C(t)$ berücksichtigt. Eine Vergrößerung von t_{tot} bewirkt in diesem Modell einen schnelleren Anstieg von Θ_{BC} . Die zeitliche Entwicklung von Θ_{BC} läuft asymptotisch gegen einen Grenzwert. Dieser Grenzwert wird für die Skalierung der experimentellen und der simulierten Intensitäten benutzt. Aus der zeitabhängigen Entwicklung von Θ_{BC} wird mit der Gleichung 7.4.3 der Bedeckungsgrad Θ_B ermittelt. Der Bedeckungsgrad liefert dann mit Gleichung 7.4.5 die Intensität die dann mit der experimentellen Intensitätskurve verglichen werden kann (Abb.7.4.1). Die Differentialgleichung muß mit einem vorgegebenem Wert D_C einen zeitlichen Verlauf für den Intensitätsanstieg der C-induzierten Rekonstruktion liefern, der mit dem experimentellen Intensitätsverlauf zur Deckung zu bringen ist.

In dem Startbereich der simulierten Intensität zeigt sich bis zu 5 % der Maximalintensität (MI) ein fast sprungartiger Anstieg der Intensität, der mit der anfänglichen Anreicherung von Kohlenstoff in den oberen Lagen während der Totzeit zusammenhängt. Dieser Sprung bewegt sich von der Größenordnung in der Schwankungsbreite der experimentellen Meßpunkte. In dem Bereich zwischen 25 % und 75 % der MI können die experimentellen Werte mit dem Modell gut angefitet werden. Damit ergibt sich eine einfache Möglichkeit die halbe Anstiegszeit $t_{1/2}$, die mit dem Erreichen der halben Intensität verbunden ist, zu bestimmen.

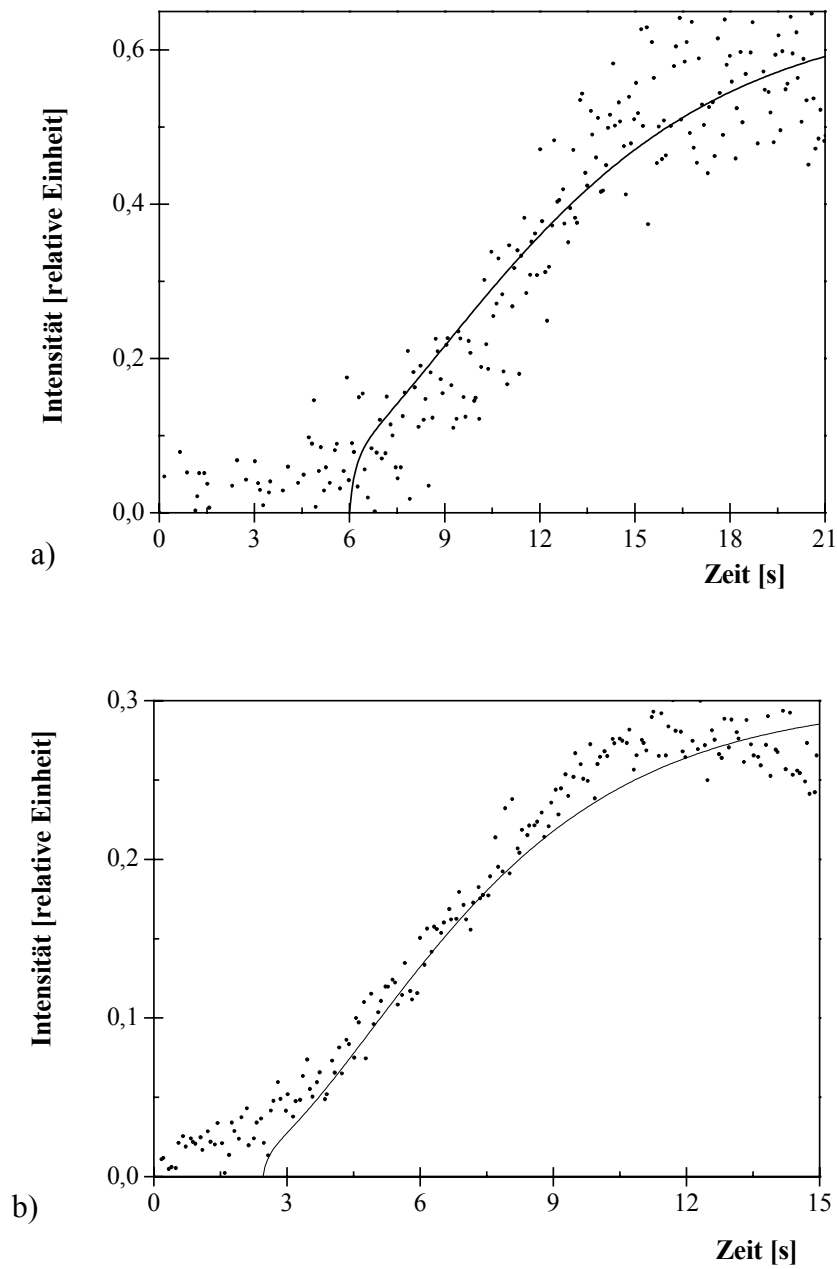


Abb. 7.4.1: Vergleich zwischen der simulierten Intensitätskurve (durchgezogene Linie) und den experimentellen Meßpunkten der zeitabhängigen Intensität für 620°C, a) der $\text{Si}(111)(\sqrt{3} \times \sqrt{3})\text{R}30^\circ$ -Rekonstruktion und b) der $\text{Si}(100) \text{c}(4 \times 4)$ -Rekonstruktion

Die Bestimmung der Diffusionskoeffizienten für die beiden Si-Oberflächen liefert folgende Werte gemäß Abb. 7.4.2 :

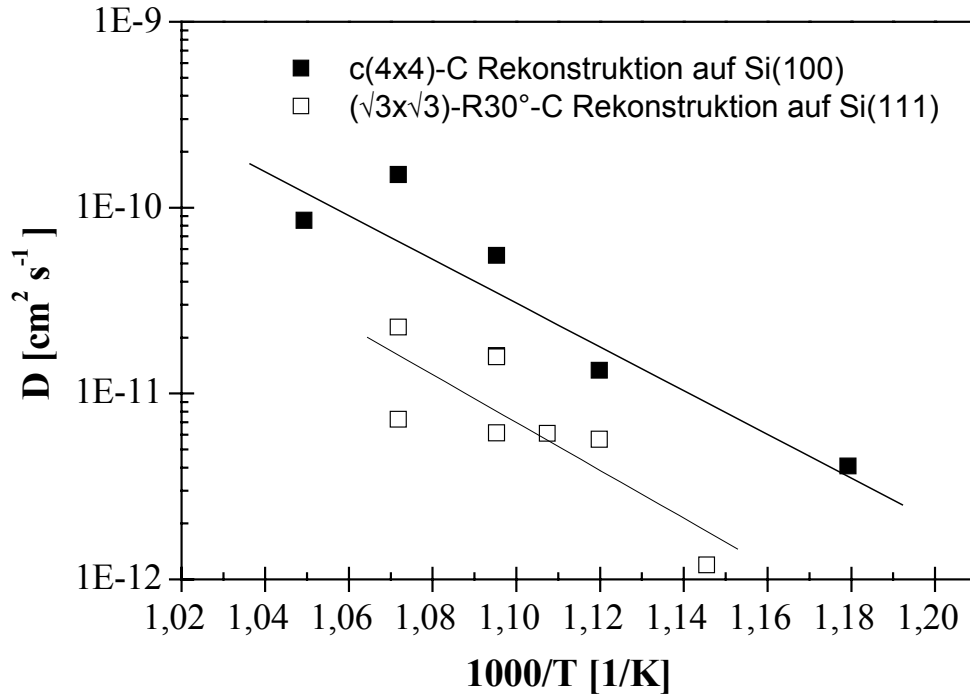


Abb. 7.4.2: C-Diffusionskoeffizient auf der Si(111)- und der Si(100)- Oberfläche

Aus dem Anstieg der Regressionsgeraden in der Abb. 7.4.2 läßt sich nach dem kleinsten Fehlerquadrat der Diffusionskoeffizient angeben:

Si(111)-Oberfläche:

$$D = 1011 \cdot \exp(-2.5 / k \cdot T) [\text{cm}^2 \text{s}^{-1}] \quad (7.4.8)$$

Si(100)-Oberfläche:

$$D = 268 \cdot \exp(-2.3 / k \cdot T) [\text{cm}^2 \text{s}^{-1}] \quad (7.4.9)$$

Die Aktivierungsenergie von 2,3 eV für die Si(100)-Oberfläche kann mit der ab initio Simulation von [Liu00], für eine C-Diffusion über größere Distanzen mit einer Aktivierungsenergie von 2,45 eV zusammengebracht werden, da die hier ermittelte Domänengröße von 500 Angström einer Diffusionslänge von mehr als 30 Oberflächenelementarzellen entspricht. Die Aktivierungsenergie E_A auf der Si(111)-Oberfläche liegt in der gleichen Größenordnung mit 2,5 eV. Die um rund 9 % höhere Aktivierungsenergie ist mit der höheren Bindungsenergie von Kohlenstoff auf der Si(111)-Oberfläche gegenüber der Si(100)-Oberfläche von 20 % zu begründen [Tak85]. Damit ein C-Transportprozeß auf atomarer Skala stattfinden kann, müssen die C-Si-Bindungen auf der Si-Oberfläche aufgespalten und wieder neu geknüpft werden. Damit wird ein Teil der aufzuwendenden bzw. frei werdenden Energie von einem anderen Kohlenstoffatom geliefert bzw. aufgenommen. Die Aktivierungsenergien sind um 0,7 eV für die Si(100)- bzw. 0,5 eV für die Si(111)-Oberfläche kleiner als die von [New61] im Si-Volumen ermittelten Diffusionskoeffizienten. Die bestimmten Absolutwerte der C-Diffusion sind um rund fünf Größenordnungen größer als die im Si-Volumen. Dieser Unterschied um mehrere Größenordnung deckt sich mit den theoretischen Überlegungen von Tersoff et al [Ter95] für den oberflächennahen Bereich. Eine andere experimentell wichtige Aussage folgt aus der obigen Modellierung des Diffusionsverhaltens, ohne Benutzung von zusätzlichen Größen aus der Literatur, bezüglich der Bildung eines Komplexes aus Si-interstitiell und substitutionell eingebautem Kohlenstoff [Wer98]. Die Aktivierungsenergie für die Diffusion dieses Komplexes liegt bei 1,63 eV, was auf eine hohe Beweglichkeit des Kohlenstoffs schließen läßt. In der bei der Rekonstruktionsausbildung beobachteten Diffusion existiert eine Anreicherung der oberen vier Lagen mit ~ 1 ML Kohlenstoff. Diese starke Übersättigung führt dazu, daß gemäß [Wer98] die Si-Zwischengitteratome stark verringert werden und damit die Komplexbildung trotz des großen C-Angebotes nicht stattfinden kann. Eine Übersättigung der oberen Lagen im Si-Gitter führt desweiteren zu einer Verringerung des substitutionell eingebauten Kohlenstoffs [Ost97] und damit wird die Bildung des hochbeweglichen Si-C-Komplexes auch von den Kohlenstoffreaktionspartnern begrenzt.

7.5 Zusammenfassung

- (1) Auf der Grundlage einer geometrischen Analyse der RHEED-Muster wurden während der Karbonisierung die Si(111)($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$)R30°-C-Rekonstruktion und der Si(100) c(4x4)-C-Rekonstruktion ermittelt. Die Mißverständnisse in der Literatur, bezüglich des Auftretens der Si(100) p(2x2)-C- bzw. der Si(100) c(2x2)-C-Rekonstruktion, konnten geklärt werden.
- (2) Es wurden die Existenzgebiete der kohlenstoffinduzierten Oberflächenrekonstruktionen auf der Si(111)- und der Si(100)-Oberfläche unter SSMBE-Bedingungen ermittelt. Für die Transformationen der Si-Ausgangsrekonstruktionen in die kohlenstoffinduzierten Rekonstruktionen wurden erstmals Phasendiagramme erstellt. Die Existenz der Si(111)($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$)R30°-C-Rekonstruktion und der Si(100) c(4x4)-C-Rekonstruktion konnten für den Fall der Wechselwirkung der Siliziumoberfläche mit elementarem Kohlenstoff in einem größeren Temperaturbereich, als in der Literatur derzeit bekannt, ermittelt werden. Für die Si(100) p(2x2)-C-Rekonstruktion konnte der Existenzbereich unter SSMBE-Bedingungen in einem weiten Temperaturbereich ermittelt werden.
- (3) Aus den charakteristischen Anstiegszeiten der Intensitätszeitverläufe für die Si(111)($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$)R30°-C- und für die Si(100) c(4x4)-C-Rekonstruktion konnte mit einem kinematischen Modell der C-Bedeckung die C-Oberflächendiffusionskoeffizienten auf C-rekonstruierten Si-Oberflächen ermittelt werden. Für die Si(111)-Oberfläche ergibt sich damit ein Diffusionskoeffizient von $D = 1011 \cdot \exp(-2.5 / k \cdot T) [cm^2 s^{-1}]$ und für die Si(100)-Oberfläche ein Diffusionskoeffizient $D = 268 \cdot \exp(-2.3 / k \cdot T) [cm^2 s^{-1}]$.

8 Strukturanalyse mit RHEED

In den vorangegangenen Abschnitten 7.1 und 7.2 sind aus den charakteristischen Zeiten der Timescans die Kohlenstoffbedeckungen während der Ausbildung der Intensitätsmaxima der kohlenstoffinduzierten Rekonstruktionen bestimmt worden. Das Ziel in diesem Kapitel ist es anhand dieser Daten Strukturmodelle für die kohlenstoffinduzierten Rekonstruktionen $\text{Si}(111)(\sqrt{3}\times\sqrt{3})\text{R}30^\circ\text{-C}$ und der $\text{Si}(100)\text{ c}(4\times4)\text{-C}$ zu generieren und anschließend mittels RHEED-Simulationen diese Strukturvorschläge zu verifizieren. Die technologische Bedeutung liegt darin begründet, daß Oberflächenrekonstruktionen in Epitaxieprozessen für die Kontrolle und die Steuerung der Abscheidung verwendet werden können. Bei der Homoepitaxie von SiC ist es in [Fis95] durch gezieltes Einstellen der siliziumreichen $6\text{H-SiC}(0001)(\sqrt{3}\times\sqrt{3})\text{R}30^\circ\text{-Si}$ bzw. der siliziumreichen $6\text{H-SiC}(0001)(3\times3)\text{-Si}$ gelungen, einen definierten Polytypwechsel zwischen hexagonalen Polytypen und der kubischen Form von SiC durchzuführen.

In einem weiteren Schritt soll mit der RHEED-Simulation untersucht werden inwieweit mit RHEED eine Polytyperkennung von SiC-Epitaxieschichten durchgeführt werden kann. Im Vordergrund stehen hier die technisch interessanten SiC-Polytype 6H-, 4H-SiC und 3C-SiC. Dies ist notwendig, um heteropolytype Strukturen zu erzeugen [Pez97]. Die *in situ* Erkennbarkeit eines Polytypwechsels ist hierfür eine entscheidende Voraussetzung.

8.1 RHEED-Simulationsmodell

Die Elektronen-Beugungserscheinungen können unter Zuhilfenahme der Schrödingergleichung beschrieben werden. Die Schrödingergleichung beschreibt die Wellenfunktion von Elektronen im Kristall. Die umfassendste Beschreibung der Elektronenbeugungseffekte liefert die dynamische Theorie. In der dynamischen Theorie wird sowohl die mehrfache elastische Streuung als auch Effekte, die von inelastischer Streuung herrühren, berücksichtigt. Wegen der komplexen Software, für diese Art der Beugungsbeschreibung, ist die benötigte Rechnerzeit relativ groß. Neben dieser Problematik existiert bei der dynamischen Theorie das Problem der Eindringtiefe des Elektronenstrahles, die in der Literatur bei RHEED sehr uneinheitlich gesehen wird, was in dem Abschnitt 5.2. dargestellt wurde. Da in dem hier betrachteten Fall keine Rockingkurven oder die RHEED-Intensitätskurven in Abhängigkeit von der de-Broglie-Wellenlänge simuliert werden, die nur mit der dynamischen Theorie ausreichend gut beschrieben werden können, bietet sich die vereinfachte kinematische Beugungstheorie als angepaßte Beschreibungsform an. Für die folgenden kinematischen RHEED-Simulationen wird eine modifizierte Software von dem Paul-Drude-Institut für Festkörperelektronik in Ber-

lin eingesetzt. Das Programm benutzt ein IDL-Tool als graphische Programmieroberfläche. Zur Erläuterung der Dateneingabe für die RHEED-Simulation ist exemplarisch in dem Anhang ein Datenfile für die Struktursimulation einer Rekonstruktion aufgelistet.

In der kinematischen Theorie wird nur die einfache elastische Streuung berücksichtigt. Die Anwendung der Störungstheorie liefert eine Näherungslösung für die kinematische Beschreibung der Amplitude A der gebeugten Elektronenwelle [Bra96]. Die Elektronenwelle wird in diesem Fall für große Abstände von den Streuzentren mit einer ebenen Welle angenähert. Die Richtung der Elektronenwelle ist über den Wellenzahlvektor \underline{k} , für die ursprüngliche Richtung aus der Elektronenkanone, und mit \underline{k}' für die Richtung der gebeugten Elektronenwelle, wie folgt definiert:

$$A(\underline{k} - \underline{k}') = \frac{1}{4\pi} \int \exp[i(\underline{k} - \underline{k}') \cdot \underline{r}] U(\underline{r}) d\underline{r} \quad (8.1.1)$$

Die Potentialfunktion $U(\underline{r})$ beschreibt die Wechselwirkung der einfallenden Elektronen mit dem Kristall. Die Information bezüglich des Kristallgitters und der Art der Atome, d. h. Streuzentren, ist in dieser Potentialfunktion enthalten. Damit kann die Gleichung (8.1.1) umgeschrieben werden:

$$A(\underline{G}, s) = N \frac{me2\pi}{h^2} \sum_i u_i(s) \exp(-B_i(T)s^2) \exp(i\underline{G} \cdot \underline{r}_i) \quad (8.1.2)$$

$$s = \frac{\sin \Theta}{\lambda} \quad (8.1.3)$$

Der Winkel zwischen \underline{k}' und \underline{k} beträgt Θ . Die Größe λ bezeichnet die de Broglie Wellenlänge der Elektronen. Der reziproke Gittervektor \underline{G} definiert mögliche Reflektionen und N ist die Anzahl von Einheitszellen in dem Volumen, die mit dem ankommenden Elektronenstrahl in Wechselwirkung tritt. In der Elementarzelle werden i unterschiedliche Atome, welche an den Positionen \underline{r}_i positioniert sind, berücksichtigt. Der Debye–Waller Faktor B_i und die Doyle–Turner Potentiale u_i sind aus [Rei83, Doy68] entnommen worden.

Das verwendete Simulationsprogramm berücksichtigt zusätzlich noch die Extinktion des Elektronenstrahles in dem Kristall, so wie sie in Abschnitt 5.2. hergeleitet worden ist und das mittlere innere Potential der oberflächennahen Kristallschichten. Mit der Auswertung der Kikuchilinien in Abschnitt 5.3 war es gelungen, das mittlere innere Potential (MIP) des Si-Volumenmaterials zu bestimmen. In den nun folgenden Simulationen geht es darum, nur die oberflächennahen Schichten, die die Rekonstruktion ausmachen, in eine RHEED-Simulation einzubringen. Das mittlere innere Potential muß für den oberflächennahen Bereich modifiziert werden. Die Bindungen zwischen den Atomen an der Kristalloberfläche sind weniger stark als im Volumen. Die Bindungsstärke beeinflusst in entscheidender Weise das mittlere innere Potential [Bra96, Mül94]. Das Potential der Oberfläche bzw. der oberflächennahen Bereiche ist daher gegenüber dem Volumenpotential verringert. In der Arbeit von [Bra96] konnten erfolg-

reich Rekonstruktionen auf der GaAs-Oberfläche, mit einem um rund 50 % verringerten mittleren inneren Potential, verifiziert werden. In den nun folgenden Simulationen wird analog verfahren und das Si-Oberflächenpotential mit 6,4 V festgelegt. Für die Simulation der obersten 4 bzw. 6 Lagen, der 4H- und 6H-SiC-Polytype in Abschnitt 8.4 wird analog verfahren und das Oberflächenpotential zu 8,4 V festgelegt. Das mittlere innere Potential des Volumenkristalls ist in Abschnitt 5.3 mit RHEED aus den Kikuchilinen bestimmt worden. Die Kikuchilinen entstehen durch inelastische Beugung an tiefer liegenden Netzebenen des Kristalls. Damit ist neben den Oberflächeninformationen in dem RHEED-Bild auch mittels der Kikuchilinen eine Information über das mittlere innere Potential des Kristallvolumens vorhanden was in der obigen Weise für die RHEED-Simulation genutzt werden kann.

8.2 Strukturermittlung für die $\text{Si}(111) (\sqrt{3} \times \sqrt{3}) \text{R}30^\circ$ - C-Rekonstruktion

Auf der Si(111)-Oberfläche konnte man eine kohlenstoffinduzierte Rekonstruktion beobachten, die $(\sqrt{3} \times \sqrt{3}) \text{R}30^\circ$ -Rekonstruktion. Bevor die Strukturvorschläge für diese Rekonstruktion entwickelt werden, ist es angebracht, sich einen Überblick über die Strukturvorschläge anderer Rekonstruktionen auf der Si(111)-Oberfläche zu verschaffen, die über identische geometrische Charakteristika verfügen.

Prinzipiell ist die Anordnung von Einzelatomen oder Trimeren in der S_5 -, T_4 - und der H_3 -Position möglich. Die Buchstaben stehen für die englischen Positionsbezeichnungen sub, top und hollow. Die Positionierung S bedeutet die Anordnung unterhalb eines anderen Atoms, mit T wird die exponierte Lage auf der Oberfläche bezeichnet und mit H wird die Positionierung innerhalb des Sechseringes auf der (111) – Oberfläche gekennzeichnet. Die Indizierung mit kleinen Zahlen gibt die Anzahl von Nachbaratomen in der jeweiligen Positionierung an.

In [Won95] findet sich der Hinweis, daß für Ga und Bi induzierte Rekonstruktionen auf der Si(111) - Oberfläche der Einbau, dieser vom Atomradius her größeren Elemente als Si, bevorzugt in die T_4 -Position erfolgt. Für den Einbau des Bor's geht [Won95] von der S_5 - Position aus. Eine H_3 -Positionierung für das Element Kohlenstoff erscheint nach den Überlegungen von [Sab97] für die hexagonale SiC-Oberfläche nur mit Trimeren möglich. Für die Si-Oberfläche ist die Positionierung von C-Einzelatomen in der H_3 -Position und der T_4 -Position wegen der größeren Gitterkonstante energetisch noch ungünstiger.

Die Entwicklung von möglichen Strukturen für die Rekonstruktion ist durch die experimentelle RHEED-Intensitätsbeobachtung der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3}) \text{R}30^\circ$ Rekonstruktion eingeschränkt. Aus der Abb. 7.1.3 ist zu entnehmen, daß maximal 1ML Kohlenstoff für den Aufbau der Rekonstruktion zur Verfügung stehen.

Für die Entwicklung der Strukturmodelle der kohlenstoffinduzierten ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30° - Rekonstruktion, wurde die Molekular-Dynamische-Simulation (MD-Simulation) eingesetzt [Koi00]. Die Superzelle für die MD-Simulation besteht aus 1296 Einzelatomen. In einem ersten Schritt wurden C-Trimere in die S₅ -, T₄ - und die H₃ - Position eingebaut und die Strukturen jeweils mit der MD-Methode optimiert. Diese Strukturvorschläge benötigen 1 ML Kohlenstoff für den strukturellen Aufbau.

In einem zweiten Schritt wurden Einzel-Kohlenstoffatome in die S₅ -, T₄ - und der H₃ - Position eingefügt. Es zeigte sich, daß mit der MD-Simulation keine periodischen Strukturen in der vorgelegten Superzelle entstanden. Diese Strukturen benötigen für den Rekonstruktionsaufbau 1/3 ML Kohlenstoff. Der zusätzlich in den oberen Lagen eingebaute Kohlenstoff von rund 2/3 ML hat also auf die Rekonstruktion einen stabilisierenden Einfluß, der in der MD-Simulation ebenfalls berücksichtigt werden muß. Für eine Modellierung dieser Strukturen muß eine Legierung generiert werden, bei der der Kohlenstoff statistisch in der Siliziummatrix verteilt ist. Für eine ausreichende Statistik ist aber die in der Simulation verwendete Superzelle nicht groß genug. Daher wurden diese Strukturvorschläge nach geometrischen Gesichtspunkten konstruiert, d.h. gemäß einer Bindungslängenstreckung und Bindungswinkelveränderung die Koordinaten der Atome in der Struktur errechnet. Als Basis für die Konstruktion wurden hier die Veröffentlichungen [Nor95, Sab97] gewählt. Die Bindungslängenstreckungen, mit der durch *ab initio* Berechnungen optimierten Strukturen für die ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30°, lagen bei maximal 5 %.

Da die restlichen 2/3 ML Kohlenstoff nach den obigen Modellvorschlägen statistisch in den oberen Lagen des Siliziums verteilt sind bedeutet dies für eine Beugungssimulation, daß der Kohlenstoff eine inkohärente Streuung und somit ein Hintergrundrauschen in dem Beugungsbild erzeugt aber keine feste Intensitätsmodulation auf den RHEED-Intensitätsstreifen. Dementsprechend kann dieser Anteil des Kohlenstoffs bei der Struktursimulation unberücksichtigt bleiben. Anschließend wird der Gesamtkohlenstoffeinbau des Modells, welches die beste Übereinstimmung zu dem experimentellen RHEED-Bild liefert, durch eine Modifizierung der zweiten Bilage auf 1ML Kohlenstoff erhöht und diese Struktur ebenfalls mit dem experimentellen RHEED-Bild verifiziert. Von allen Strukturvorschlägen wurden Prinzipskizzen in der Drauf- und Seitenansicht angefertigt. Die Seitenansicht stellt einen senkrechten Schnitt durch die Längsachse der Oberflächenelementarzelle der ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30° - Rekonstruktion, der $[\bar{1}10]$ - Richtung, dar. Bei den folgenden Simulationen werden die Strukturvorschläge geordnet nach der H₃ -, T₄ - und S₅-Position mit der RHEED-Simulation gemäß dem experimentellen Bild Abb. 7.1.1 e verifiziert. Die im folgenden benutzten Bezeichnungen für die Beugungsstriche sind in Abb.7.1.1e enthalten. Die Beschleunigungsenergie der Elektronen wurde entsprechend der experimentellen RHEED-Aufnahmen mit 30 kV in dem Simulationsprogramm berücksichtigt.

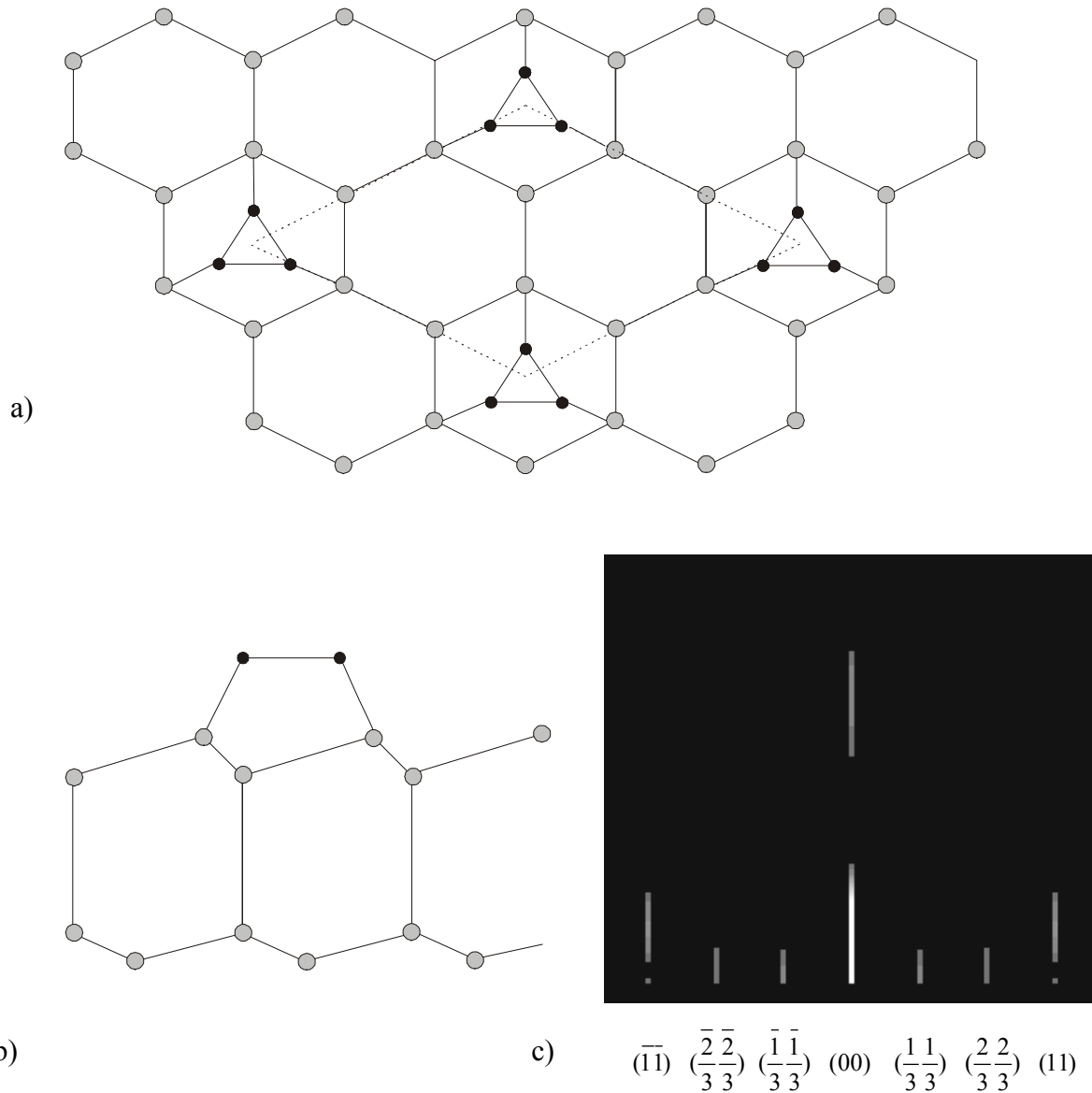
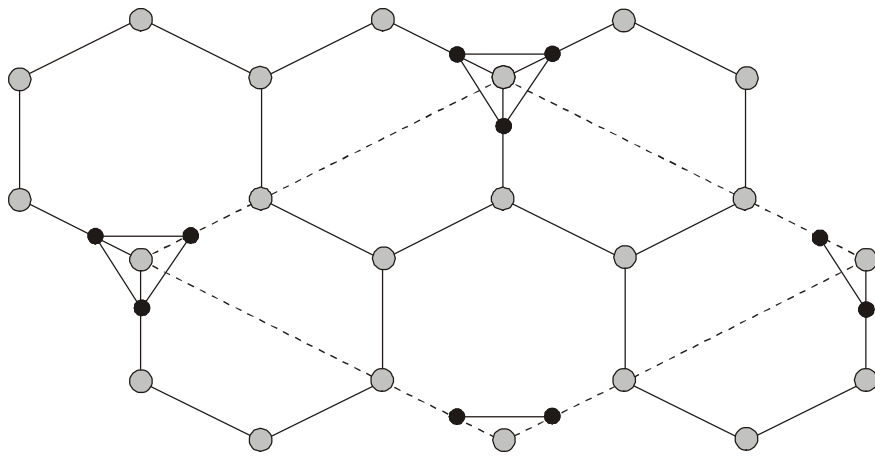
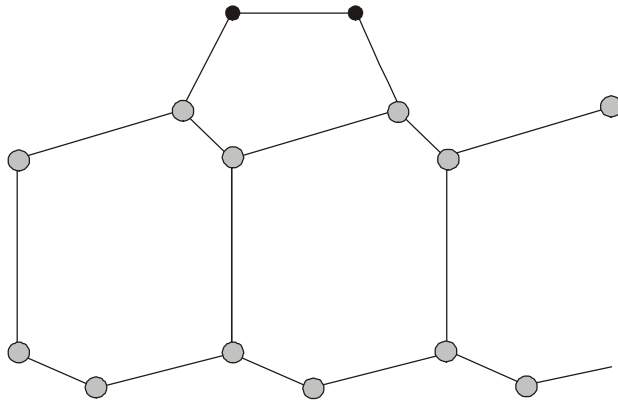


Abb. 8.2.1: a) Draufsicht auf die gestrichelt eingezeichnete Oberflächenelementarzelle der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion mit einem C-Trimer in H₃-Position. Die Kohlenstoffatome sind durch die schwarz ausgefüllten Kugeln und die Siliziumatome durch grau ausgefüllte Kugeln gekennzeichnet. b) Seitenansicht des Modells entlang der $[\bar{1}10]$ -Richtung, c) simuliertes RHEED-Bild, Azimut $[112]$.

Die Simulation liefert keine Übereinstimmung zu dem realen Beugungsbild (Abb. 7.1.1 e). Es sind sehr starke Intensitätseinbrüche auf den Rekonstruktionsstrichen zu erkennen. Die sichtbaren Intensitätsbereiche der Rekonstruktionsstriche sind gegenüber den Volumenstrichen stark verkürzt und zur Schattenkante verschoben. Desweiteren ist auf dem mittleren Rekonstruktionsstrich ein deutliches Intensitätsminimum zu erkennen.

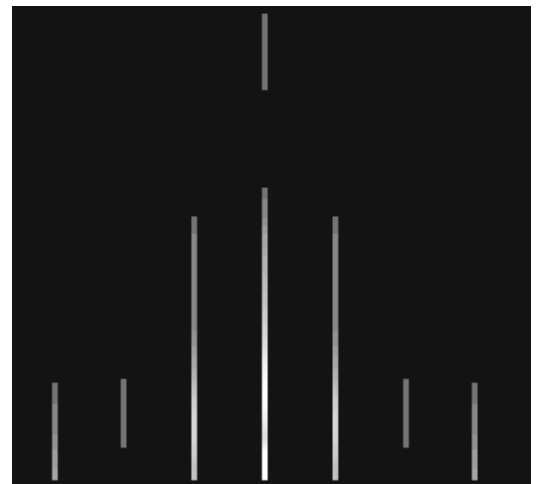


a)



b)

c)



$$(\bar{1}1) \quad \left(\frac{2}{3} \frac{2}{3}\right) \quad \left(\frac{1}{3} \frac{1}{3}\right) (00) \quad \left(\frac{1}{3} \frac{1}{3}\right) \quad \left(\frac{2}{3} \frac{2}{3}\right) (11)$$

Abb. 8.2.2: a) Draufsicht auf die gestrichelt eingezeichnete Oberflächenelementarzelle der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion mit einem C-Trimer in T_4 -Position. Die Kohlenstoffatome sind durch die schwarz ausgefüllten Kugeln und die Siliziumatome durch grau ausgefüllte Kugeln gekennzeichnet. b) Seitenansicht des Modells entlang der $[\bar{1}10]$ -Richtung, c) simuliertes RHEED-Bild, Azimut $[112]$.

Der jeweils äußere $(\frac{2}{3} \frac{2}{3})$ - und $(\frac{1}{3} \frac{1}{3})$ - Strich der beiden Rekonstruktionsstriche zwischen den Volumenstrichen zeigt gegenüber den inneren Rekonstruktionsstrichen eine zu starke Intensitätsabnahme, welche sich nicht mit Abb. 7.1.1 e deckt. Die Intensitätsstriche des Volumenmaterials zeigen verglichen mit den Rekonstruktionsstrichen ebenfalls einen starken Intensitätsabfall. Die Volumenbeugungsstriche beginnen aber wie es auch im Experiment zu beobachten ist, unmittelbar an der Schattenkante. Trotzdem entspricht der Gesamteindruck des simulierten Bildes nicht dem realen Beugungsbild.

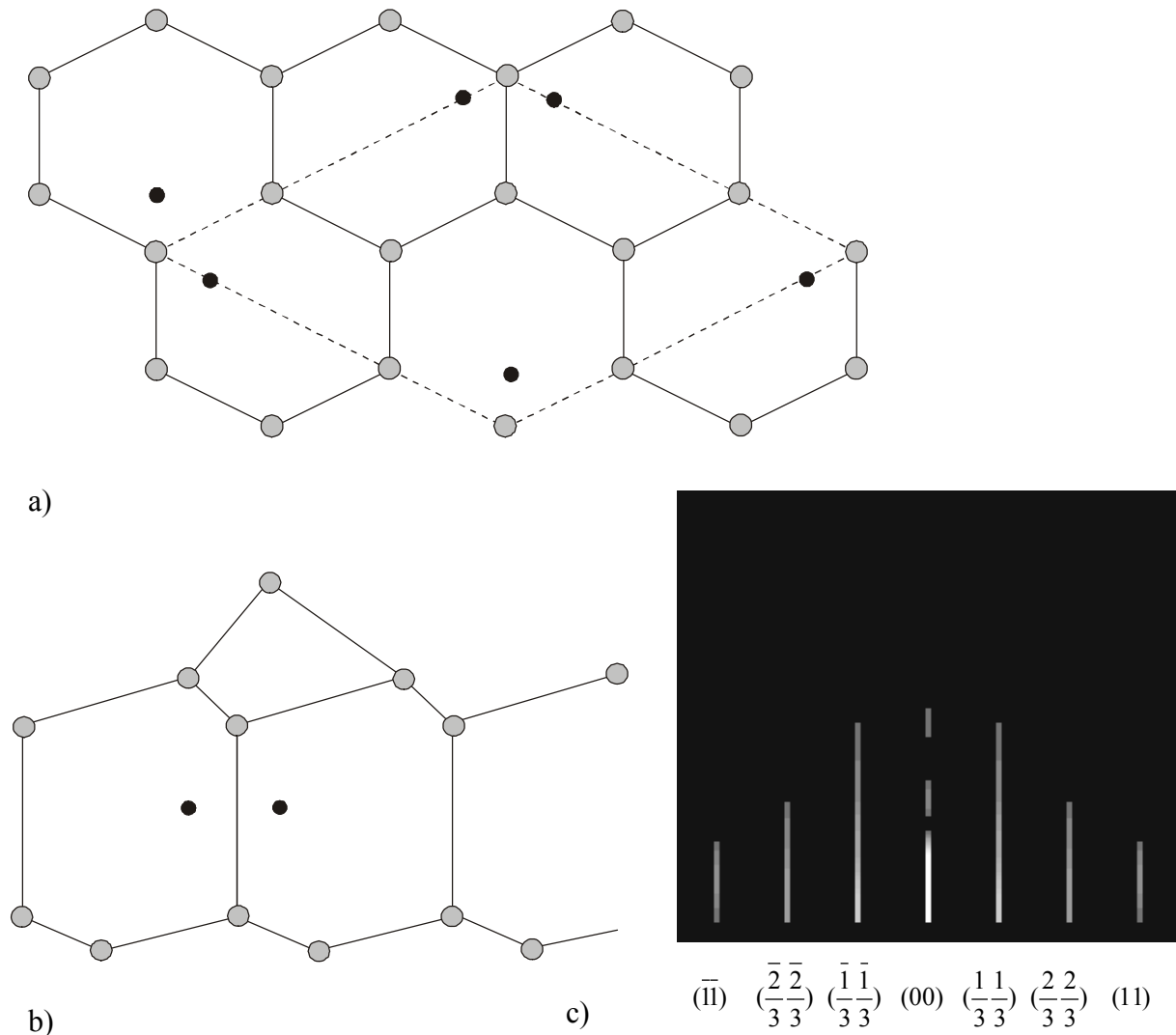


Abb. 8.2.3: a) Draufsicht auf die gestrichelt eingezeichnete Oberflächenelementarzelle der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion mit einem C-Trimer in S₅-Position. Die Kohlenstoffatome sind durch die schwarz ausgefüllten Kugeln und die Siliziumatome durch grau ausgefüllte Kugeln gekennzeichnet. b) Seitenansicht des Modells entlang der $[\bar{1}10]$ -Richtung, c) simuliertes RHEED-Bild, Azimut $[112]$.

Die simulierte Struktur liefert von allen Trimeren die beste Übereinstimmung zum Experiment. Die Intensität fällt von dem mittleren Volumenstrich gleichmäßig in Richtung höherer Ordnung der Beugungsstriche ab. Es ergibt sich damit eine gemeinsame einhüllende Funktion für die Länge der Intensitätsstriche wie sie sich auch in der Abb. 7.1.1 e zeigt. Der Schönheitsfehler des Bildes besteht nur aus den kleineren Intensitätseinbrüchen auf dem mittleren Strich. Da das Modell Mehrfachstreuungsprozesse zwischen den Atomlagen nicht berücksichtigt, kann dies insbesondere bei dem (00)-Beugungsstrich zu kleineren Abweichungen führen.

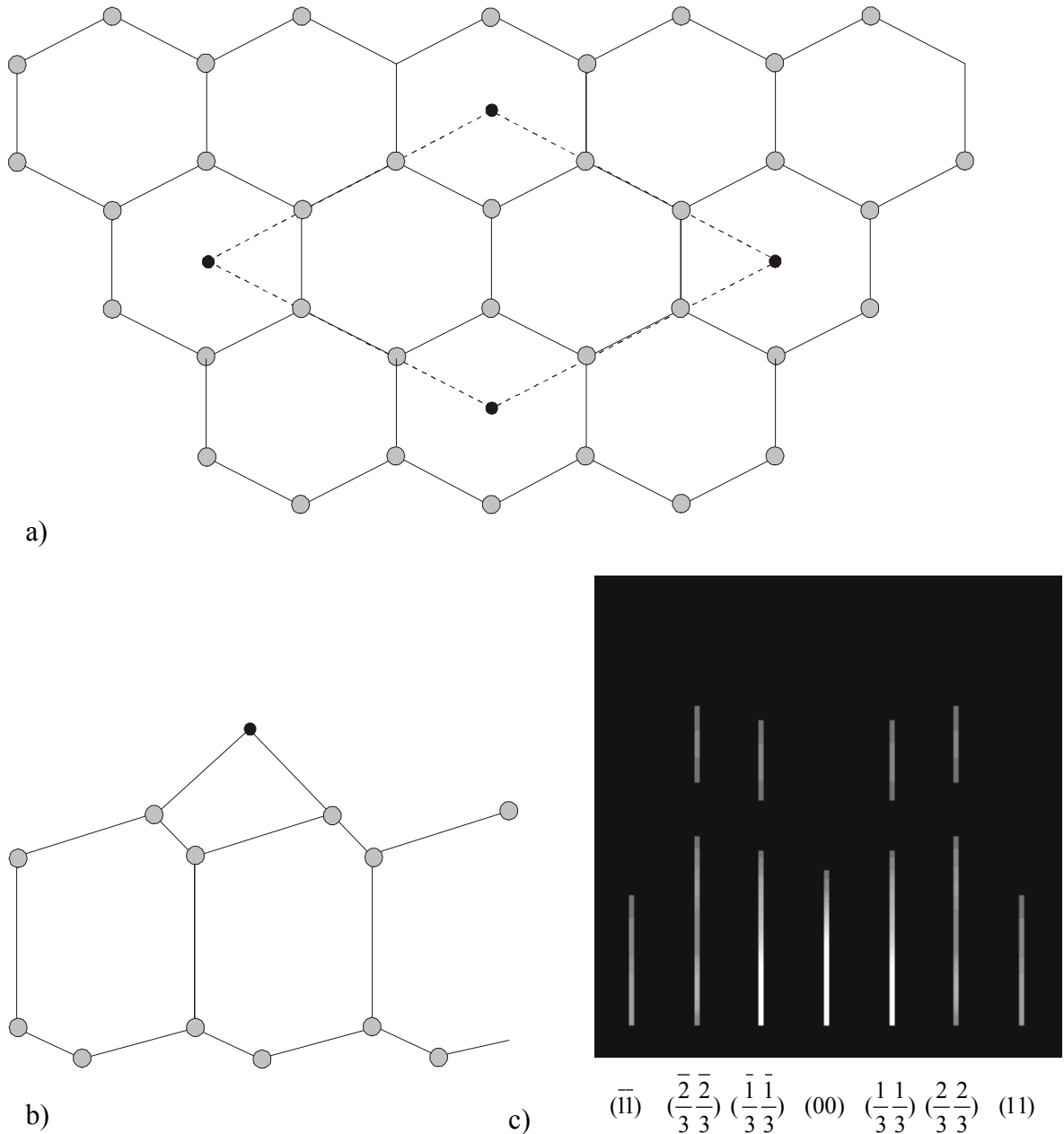
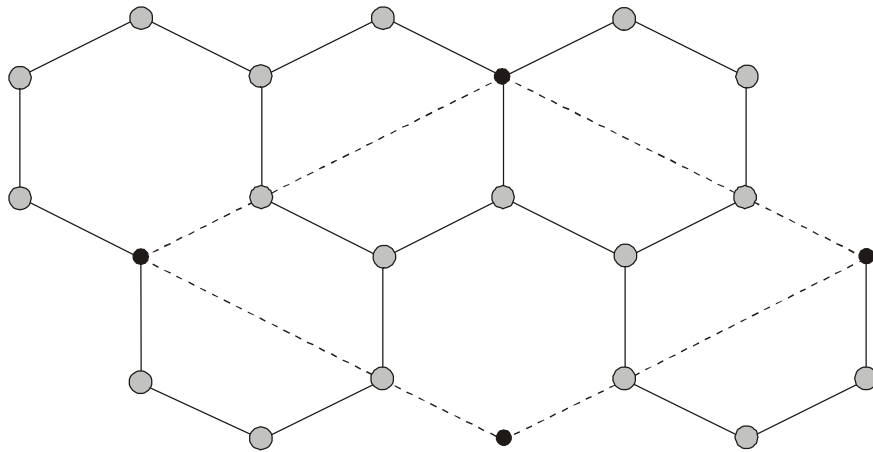
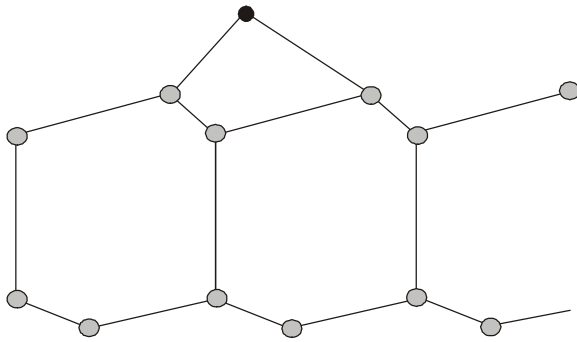


Abb. 8.2.4: a) Draufsicht auf die gestrichelt eingezeichnete Oberflächenelementarzelle der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ $R30^\circ$ -Rekonstruktion mit einem Kohlenstoffeinzelatom in H_3 -Position. Die Kohlenstoffatome sind durch die schwarz ausgefüllten Kugeln und die Siliziumatome durch grau ausgefüllte Kugeln gekennzeichnet b) Seitenansicht des Modells entlang der $[\bar{1}10]$ – Richtung c) RHEED-Simulation der Struktur.

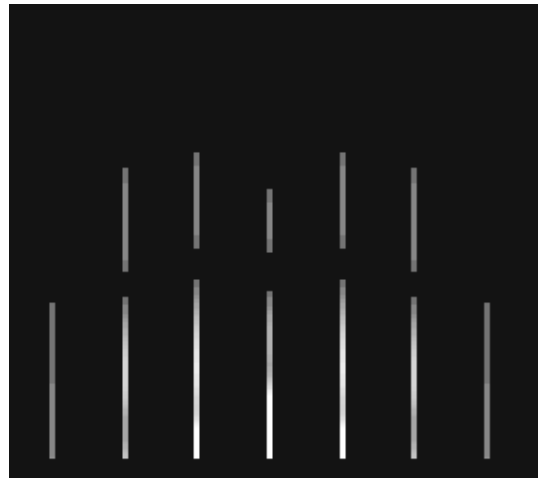
Auffallend an dem simulierten Bild ist die schwache Ausbildung des Volumenbeugungsstriches (00). Die Rekonstruktionsstriche $(\frac{2}{3}\frac{2}{3})$ und $(\frac{1}{3}\frac{1}{3})$ sind länger als die zum (00)-Intensitätsstab benachbarten Beugungsstriche. Ein anderer Aspekt sind die zu kurzen Volumenbeugungsstriche (11) und $(\bar{1}\bar{1})$. Insgesamt entspricht das simulierte RHEED-Bild nicht dem experimentell beobachteten RHEED-Bild (Abb. 7.1.1 e).



a)



b)



c)

$$(\bar{1}\bar{1}) \quad \left(\frac{\bar{2}}{3} \frac{\bar{2}}{2}\right) \quad \left(\frac{\bar{1}}{3} \frac{\bar{1}}{3}\right) \quad (00) \quad \left(\frac{1}{3} \frac{1}{3}\right) \quad \left(\frac{2}{3} \frac{2}{3}\right) \quad (11)$$

Abb. 8.2.5: a) Draufsicht auf die gestrichelt eingezeichnete Oberflächenelementarzone der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion mit einem Kohlenstoffeinzelatom in T₄-Position. Die Kohlenstoffatome sind durch die schwarz ausgefüllten Kugeln und die Siliziumatome durch grau ausgefüllte Kugeln gekennzeichnet b) Seitenansicht des Modells entlang der $[\bar{1}10]$ – Richtung c) simuliertes RHEED –Bild, Azimut $[112]$.

Gegenüber dem Modellvorschlag in Abb. 8.2.4 wurde eine Verbesserung des Gesamteindrucks erreicht. Die Länge der Rekonstruktionsstriche fällt nach außen hin ab, so wie es auch im Experiment zu beobachten ist. Der (00)–Intensitätsstab ist gegenüber den benachbarten Intensitätsstäben der Rekonstruktion verkürzt. Dies stellt noch eine wesentliche Abweichung von dem experimentellen RHEED-Bild (Abb. 7.1.1 e) dar.

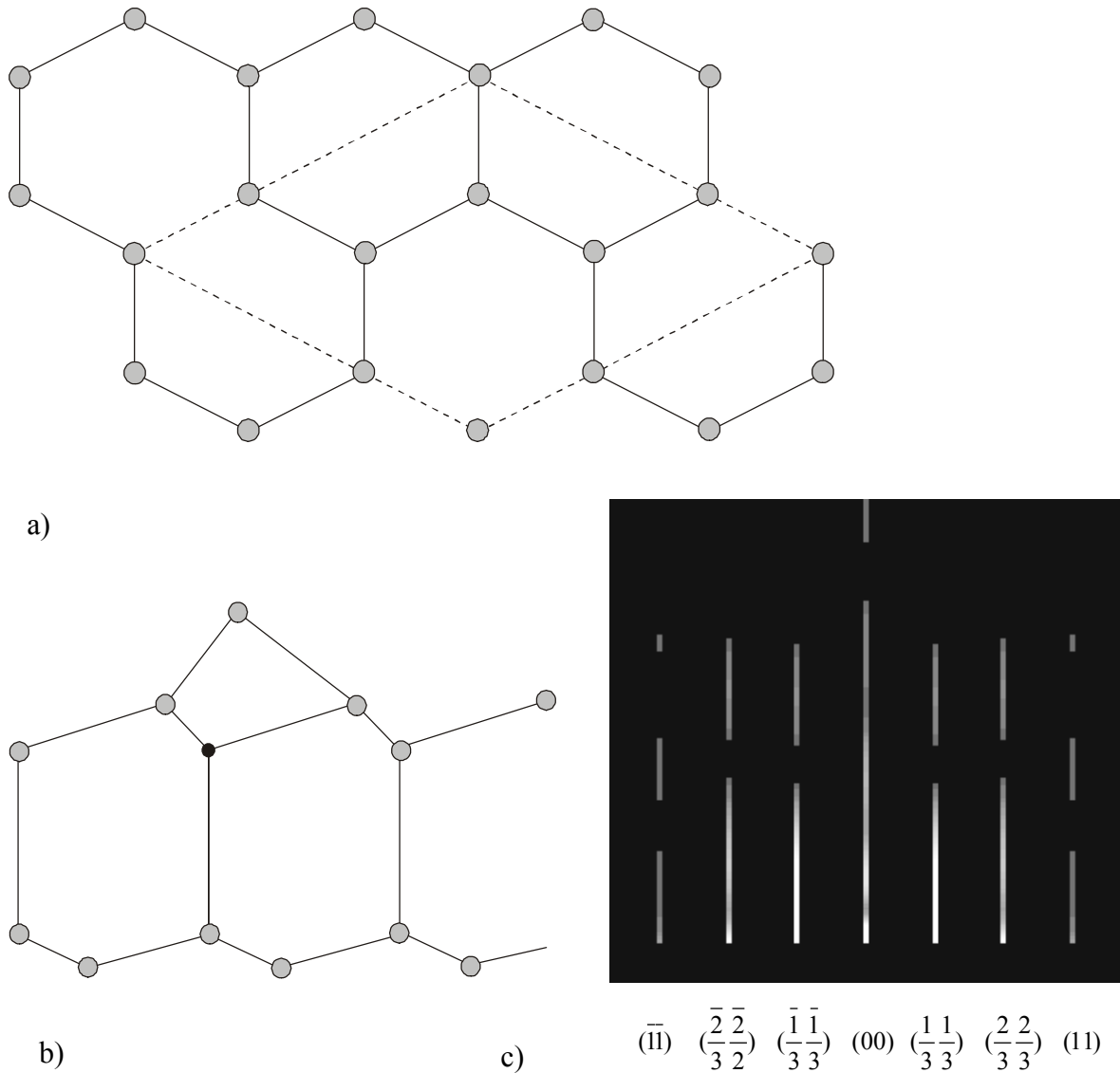


Abb. 8.2.6: a) Draufsicht auf die gestrichelt eingezeichnete Oberflächenelementarzelle der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ $R30^\circ$ -Rekonstruktion mit einem Kohlenstofffeinzelatom in S_5 -Position. b) Seitenansicht des Modells entlang der $[\bar{1}10]$ - Richtung c) simuliertes RHEED-Bild, Azimut $[112]$.

Auffallend an dem simulierten Bild ist die gute Ausbildung des Volumenbeugungsstriches (00). Dieser experimentell ebenfalls gut zu beobachtende Sachverhalt wird mit diesem Strukturmodell deutlich besser wiedergegeben als mit den Modellen in Abb. 8.2.4 und Abb. 8.2.5. Die Rekonstruktionsstäbe ergeben zusammen mit den rechts und links benachbarten Volumenbeugungsstrichen als Einhüllende für die Intensitätsstäbe ein Rechteck, wobei die äußeren Rekonstruktionsstriche geringfügig länger sind als die inneren Striche. In einem nächsten Schritt soll versucht werden durch eine zusätzliche Modifizierung dieses Strukturmodells, eine noch weitergehende Übereinstimmung zwischen dem experimentellen und dem simulierten RHEED-Bild (Abb. 7.1.1 e) zu erreichen.

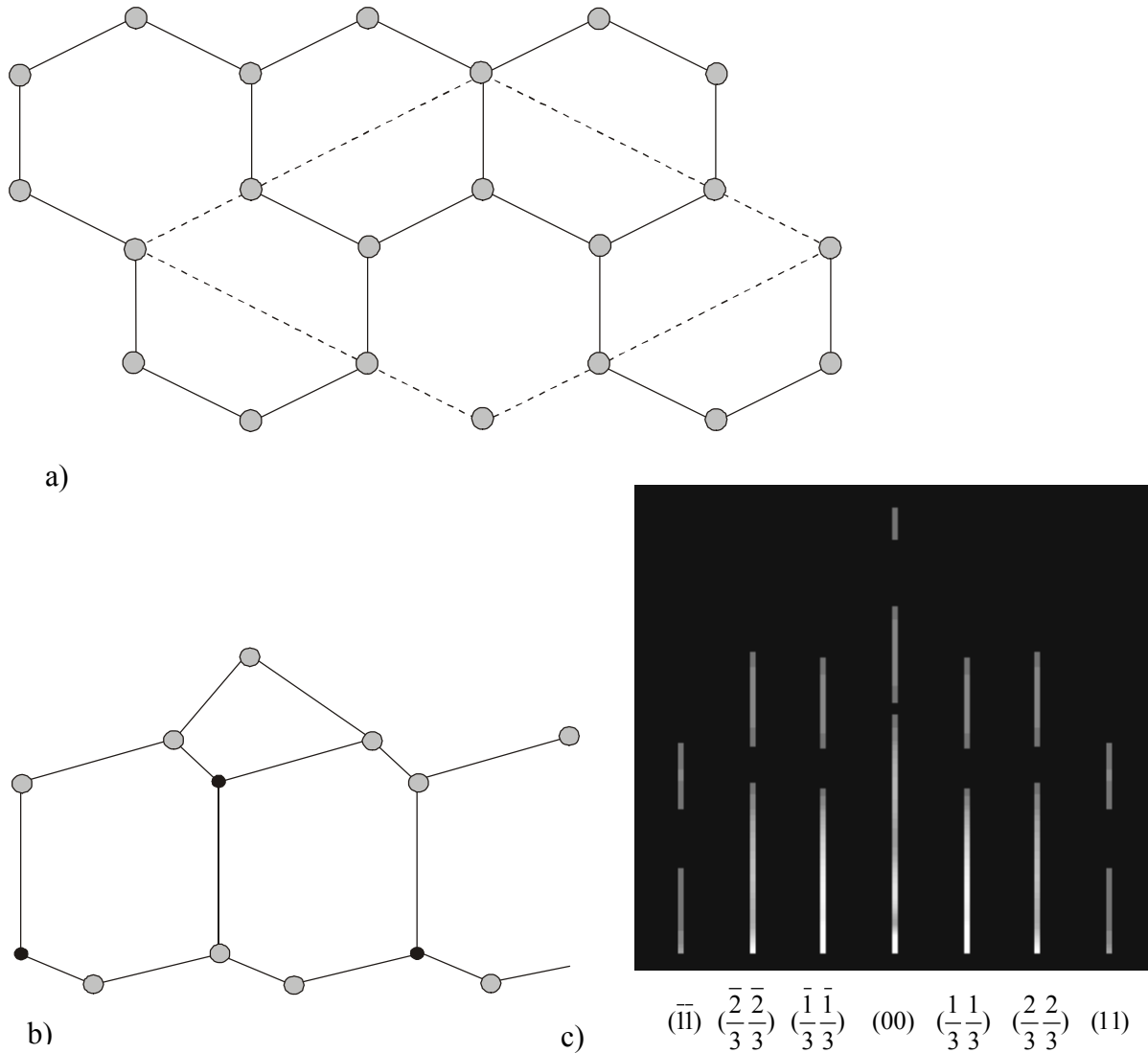


Abb. 8.2.7: a) Draufsicht auf die gestrichelt eingezeichnete Oberflächenelementarzelle der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion mit einem Kohlenstoffeinzelatom in S_5 -Position und einem zusätzlichen Einbau von Kohlenstoff in die zweite Doppellage. Der zusätzliche Einbau von zwei C-Atomen wurde nach dem dritt nächste Nachbar-Prinzip gemäß [Rüc95] durchgeführt. Die Kohlenstoffatome sind durch die schwarz ausgefüllten Kugeln und die Siliziumatome durch grau ausgefüllte Kugeln gekennzeichnet. b) Seitenansicht des Modells entlang der $[\bar{1}10]$ -Richtung c) simuliertes RHEED-Bild, Azimut $[112]$

Die Übereinstimmung zu der Abb. 7.1.1 e hat sich durch den Einbau von zusätzlichen C-Atomen in der zweiten Doppellage gegenüber dem Modell in Abb. 8.2.6 verbessert. Bei diesem Modellvorschlag ergibt sich eine Kohlenstoffgesamtbedeckung von 1ML Kohlenstoff. Die Verbesserung der Übereinstimmung kann nicht erreicht werden falls das C-Atom in der S_5 -Position durch Si ausgetauscht wird.

Die Simulation der Trimermodelle (Abb. 8.2.1, Abb. 8.2.2 und Abb. 8.2.3), welche mit der MD-Methode optimiert worden sind, ergab für die S_5 -Positionierung des Trimers (Abb. 8.2.3) eine relativ gute Übereinstimmung zu dem experimentellen RHEED-Bild (Abb. 7.1.1 e). Die Einzelatom-Positionierung ergab ebenfalls, daß die S_5 -Anordnung des Kohlenstoffs (Abb. 8.2.6) die bessere Übereinstimmung zu dem realen Beugungsbild (Abb. 7.1.1 e) zeigte. Ein zusätzlicher Einbau von Kohlenstoff in die zweite Doppellage (Abb. 8.2.7) lieferte eine Verbesserung der Übereinstimmung zu dem experimentellen Beugungsbild (Abb. 7.1.1 e). Als Quintessenz aus den RHEED-Simulationen der Modelle mit C-Einzelatomen und der mit Trimeren, kann der Schluß gezogen werden, daß eine Positionierung des Kohlenstoffs in exponierter Lage auf der Oberfläche bei der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ R30°-Rekonstruktion unwahrscheinlich ist. Die optimale Positionierung des Kohlenstoffs beinhaltet ein S_5 -Strukturelement. Damit konnte in dem Fall von Kohlenstoff die prinzipielle Aussage, daß die gegenüber Silizium kleineren Atome bevorzugt in die S_5 -Position eingebaut werden [Won95], bestätigt werden.

8.3 Strukturermittlung für die Si(100) c(4x4)-C-Rekonstruktion

Die Struktur der kohlenstoffinduzierten Rekonstruktion Si(100) c(4x4) ist in der Literatur noch nicht aufgeklärt. Neben der kohlenstoffinduzierten Si(100) c(4x4) existiert auch eine siliziuminduzierte Si(100) c(4x4)-Rekonstruktion die mittels eines Annealingprozesses aus der Si(100) p(2x1)-Rekonstruktion erzeugt werden kann und umgekehrt [Wan87]. Diese Reversibilität des Umwandlungsprozesses legt eine strukturelle Verwandtschaft zwischen den beiden Siliziumrekonstruktionen nahe. In [Wan87] wird davon ausgegangen, daß sich diese Siliziumrekonstruktionen im wesentlichen nur durch eine unterschiedliche Positionierung von Si-Dimeren unterscheiden. Die unterschiedliche Anordnung von Dimeren auf der Si(100)-Oberfläche soll im folgenden als Grundidee für den Aufbau der kohlenstoffinduzierten Si(100) c(4x4)-Rekonstruktion benutzt werden.

Für die Bestimmung der Koordinaten der Atome in der Rekonstruktion wurde so verfahren, daß die Bindungslängenänderung unter 10 % gegenüber dem entsprechenden Volumenmaterial lag. Aus den RHEED-Untersuchungen des Intensitätsmaximums der Si(100) c(4x4) ist bekannt, daß die vollständige Ausbildung der Rekonstruktion bei 0,8 ML Kohlenstoff liegt (Abb. 7.2.3). Daher dürfen die diskutierten Strukturvorschläge für die Si(100) c(4x4)-Rekonstruktion diesen Wert nicht überschreiten. Das für die Simulation verwendete Modell ist jeweils durch eine Prinzipskizze in der Draufsicht erläutert. Die Dimere, als zentraler Bestandteil der c(4x4)-Rekonstruktion, sind in den Zeichnungen durch Verbindungsstriche zwischen den jeweils am Dimeraufbau beteiligten Atomen

gekennzeichnet. Nach Eingabe der Struktur in das RHEED-Simulationsprogramm wird das Bild mit dem experimentell ermittelten Beugungsbild Abb. 7.2.1 f verifiziert.

Eine einfache Struktur für eine $c(4 \times 4)$ ist in [Ide92] mit vier Dimeren an den Ecken der quadratischen Grundzelle und einem Dimer in dem Mittelpunkt der Oberflächenelementarzelle vorgeschlagen worden. Der Strukturvorschlag wird auch als 'Single Dimer Model' bezeichnet. Die Kohlenstoffbedeckung der Si(100)-Oberfläche liegt bei diesem Modell bei 0,25 ML. Von [Wan87] wurde ein Missing-Dimer-Modell für die $c(4 \times 4)$ -Struktur vorgeschlagen. Hier sind jeweils 3 Dimere zu einer strukturellen Einheit zusammengefaßt, die sich nach einem Freiraum auf der Si(100)-Oberfläche periodisch wiederholt. Da dieser Freiraum ebenfalls einen Dimer aufnehmen könnte, wird deren Struktur mit Missing-Dimer bezeichnet. Strukturell ergibt sich durch den Versatz der Dreier-Dimere in [110]-Richtung eine enge Verwandtschaft zu dem Modellvorschlag für [Ide92]. Die C-Dimere auf der Oberfläche repräsentieren eine C-Bedeckung von 0,75 ML.

Eine andere Variante für die Anordnung der Dimere, die die Spannungen der Oberfläche in besonders gleichmäßiger Weise kompensiert, ist das π -Bindungsmodell aus [Pan85]. Die einzelnen C-Dimere sind nach diesem Modellvorschlag versetzt angeordnet und bilden ein Netz, welches die Si(100)-Oberfläche überspannt. Insbesondere für den Fall der Kohlenstoffdimere, die leichter π -Bindungen ausbilden können als Siliziumdimere, ist dies ein interessanter Strukturvorschlag für die Si(100) $c(4 \times 4)$ -Rekonstruktion. Die Kohlenstoffbedeckung der Oberfläche liegt ebenfalls bei 0,75 ML Kohlenstoff.

Es sind bisher nur Varianten diskutiert worden, die C-Dimere in einer bestimmten Anordnung auf der Oberfläche aufweisen. Deswegen ist in einem weiteren Schritt eine definierte Mischung von C-Dimeren mit Si-Dimeren sinnvoll. Für die kombinierte Zusammenstellung von Si- und C-Dimeren ist mit STM-Untersuchungen einer Si(100) $c(4 \times 4)$, während einer Gesamtbedeckung der Oberfläche von 0,11 ML Kohlenstoff, eine bestimmte Dreierkonfiguration von C- und Si-Dimeren entdeckt worden [Lei99]. Die Si(100)-Oberfläche war unter diesen Bedingungen nicht vollständig rekonstruiert. Zwei Si-Dimere schließen einen C-Dimer ein, wobei in der oberen Si-Monolage die Si-Atome in direkter Nachbarschaft zu dem C-Dimer durch Kohlenstoffatome ausgetauscht sind. Zwischen diesen Dreier-Dimeren fehlt jeweils ein Dimer. In der Veröffentlichung von [Lei99] ist eine Kohlenstoffbelegung von 8 C – Atomen für eine Oberflächenelementarzelle angegeben worden. Mit der angegebenen Anordnung der Dreierkonfigurationen liegt die Kohlenstoffbelegung pro $c(4 \times 4)$ Elementarzelle aber bei 12 Kohlenstoffatomen. Dies ergibt sich aus Symmetrieüberlegungen. Dieser Modellvorschlag für die kohlenstoffinduzierte Rekonstruktion ist bisher mit einer RHEED-Simulation noch nicht verifiziert worden.

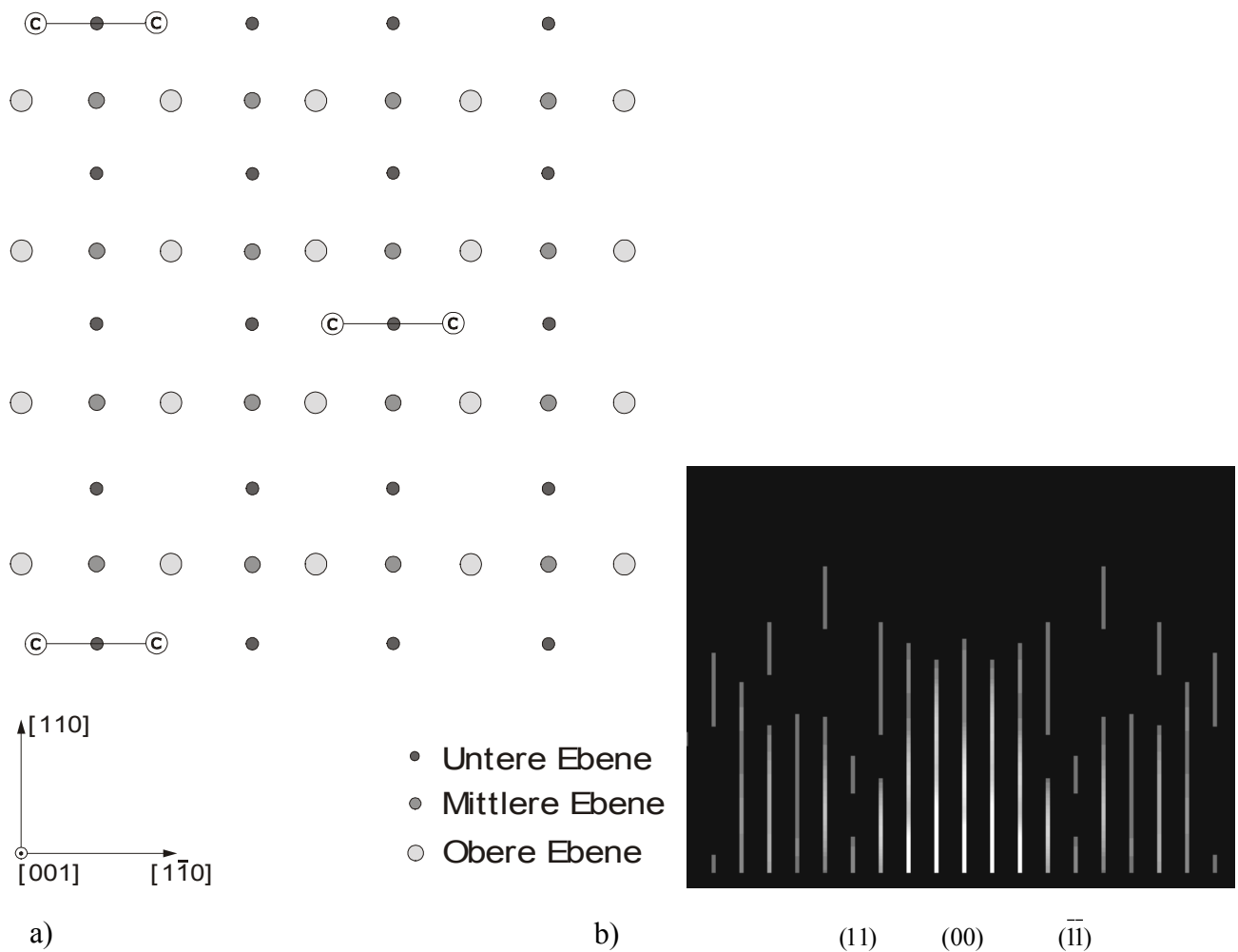


Abb. 8.3.1: a) Draufsicht des $c(4 \times 4)$ 'Single Dimer Model'. Die Anordnung der Si-Atome, charakterisiert durch ausgefüllte Kugeln, ist in der Draufsicht für drei Lagen dargestellt. Die C-Dimere sind durch einen Verbindungsstrich zwischen den beteiligten Atomen gesondert hervorgehoben. b) simuliertes RHEED-Bild, Azimut $[100]$.

Das simulierte RHEED-Bild zeichnet sich durch einen starken Intensitätseinbruch beim Volumenstrich (11) und $(\bar{1}\bar{1})$ aus. Die Rekonstruktionsstriche, in der unmittelbaren Umgebung dieser Volumenbeugungsstriche, sind relativ lang. Sie zeigen damit nicht die in Abb. 7.2.1 f zu beobachtende Strichverkürzung. Da dieser Sachverhalt gleich für mehrere Striche gilt, repräsentiert das RHEED-Bild nicht das experimentelle Beugungsbild. Die Anordnung der C-Dimere in dieser Modellvariante entspricht also nicht der Realstruktur der Rekonstruktion.

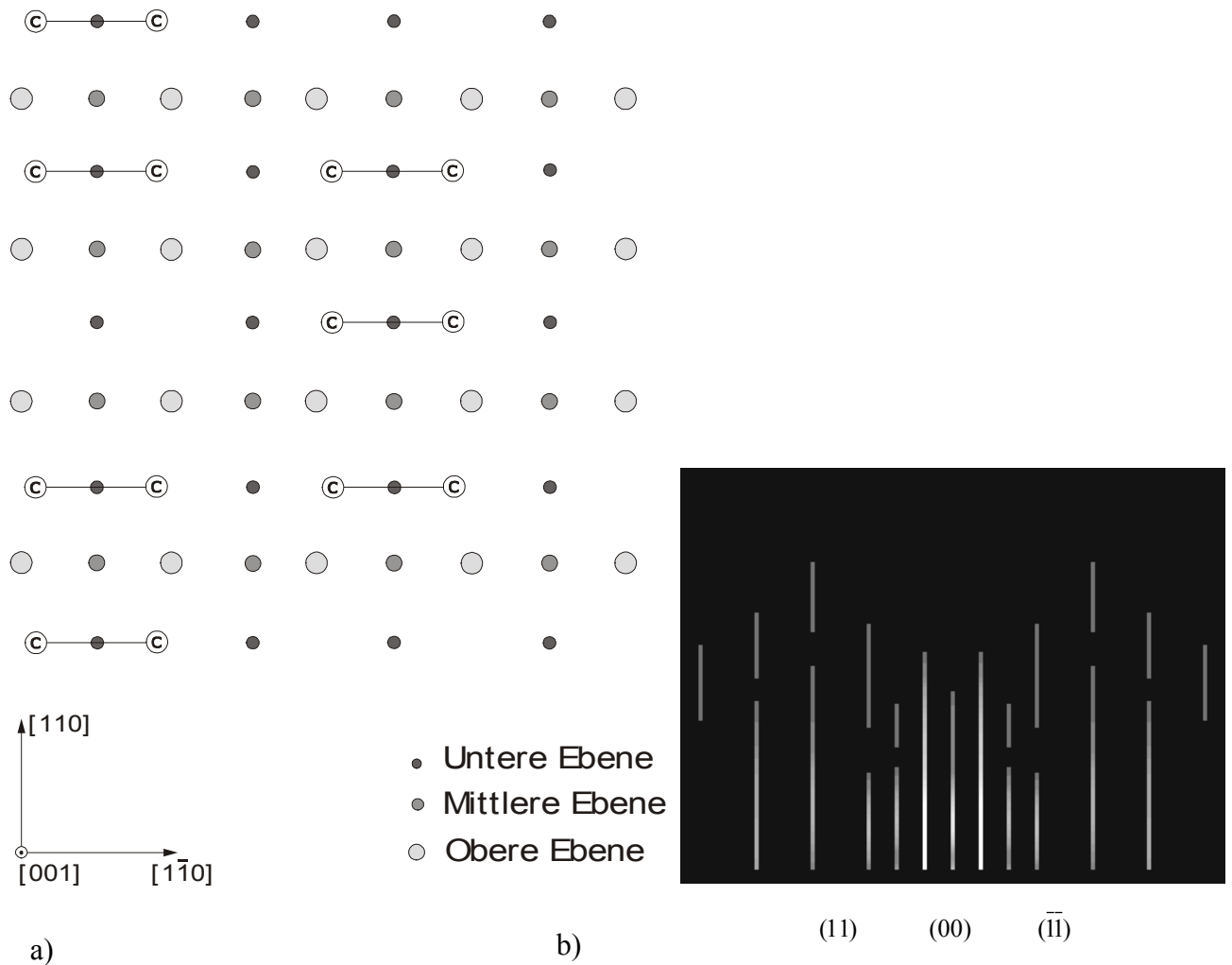


Abb. 8.3.2: a) Draufsicht des $c(4 \times 4)$ - 'Missing Dimer Model'. Jeweils drei C-Dimere können zu einer strukturellen Einheit zusammengefaßt werden. b) simuliertes RHEED-Bild, Azimut $[100]$.

In der Simulation fehlt der (11) und $(\bar{1}\bar{1})$ Volumen-Beugungsstrich. Die Rekonstruktionsstriche $(5/4 \ 5/4)$ und $(\bar{5}/4 \ \bar{5}/4)$ sind länger als der mittlere Volumenstrich (00) . Bei den folgenden Rekonstruktionsstrichen ist jeweils alternierend einer ausgelöscht. Die Anordnung der C-Dimere in der obigen Art und Weise liefert also im Beugungsbild keine Übereinstimmung zu der Abb. 7.2.1 f.

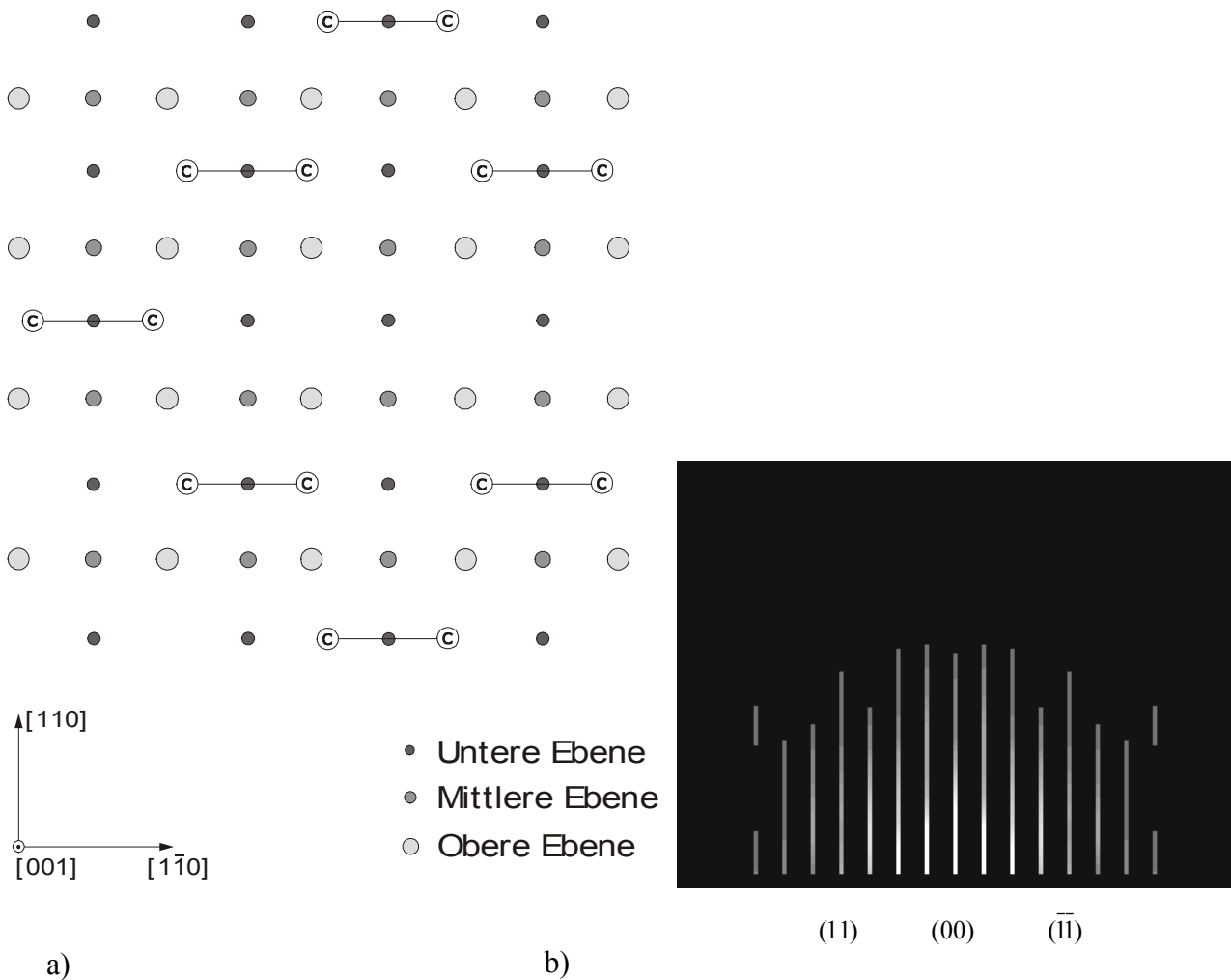


Abb. 8.3.3: a) Draufsicht des c(4x4)- 'π' Bindungs-Defekt Modell ' nach [Pan85]. Die Anordnung der Si-Atome, charakterisiert durch ausgefüllte Kugeln ist in der Draufsicht für zwei Lagen dargestellt. Die C-Dimere sind durch leere Kugeln mit einem C gekennzeichnet. b) simuliertes RHEED-Bild, Azimut [100].

In dem simulierten RHEED-Bild sind alle Rekonstruktionsstriche vorhanden und zudem fällt die Strichlänge der Beugungsstreifen nach außen ab, so wie es im Experiment zu beobachten ist. Nur die Beugungsstriche am rechten und linken Rand des Bildes zeigen mit ihrem langgezogenen Intensitätseinbruch und eines relativ weit von der Schattenkante entfernten Streifenabschnittes eine Abweichung von dem realen Bild. Insgesamt wird mit dieser nur aus C-Dimeren bestehenden Anordnung eine gute Übereinstimmung zu dem realen Bild (Abb. 7.2.1 f) erreicht.

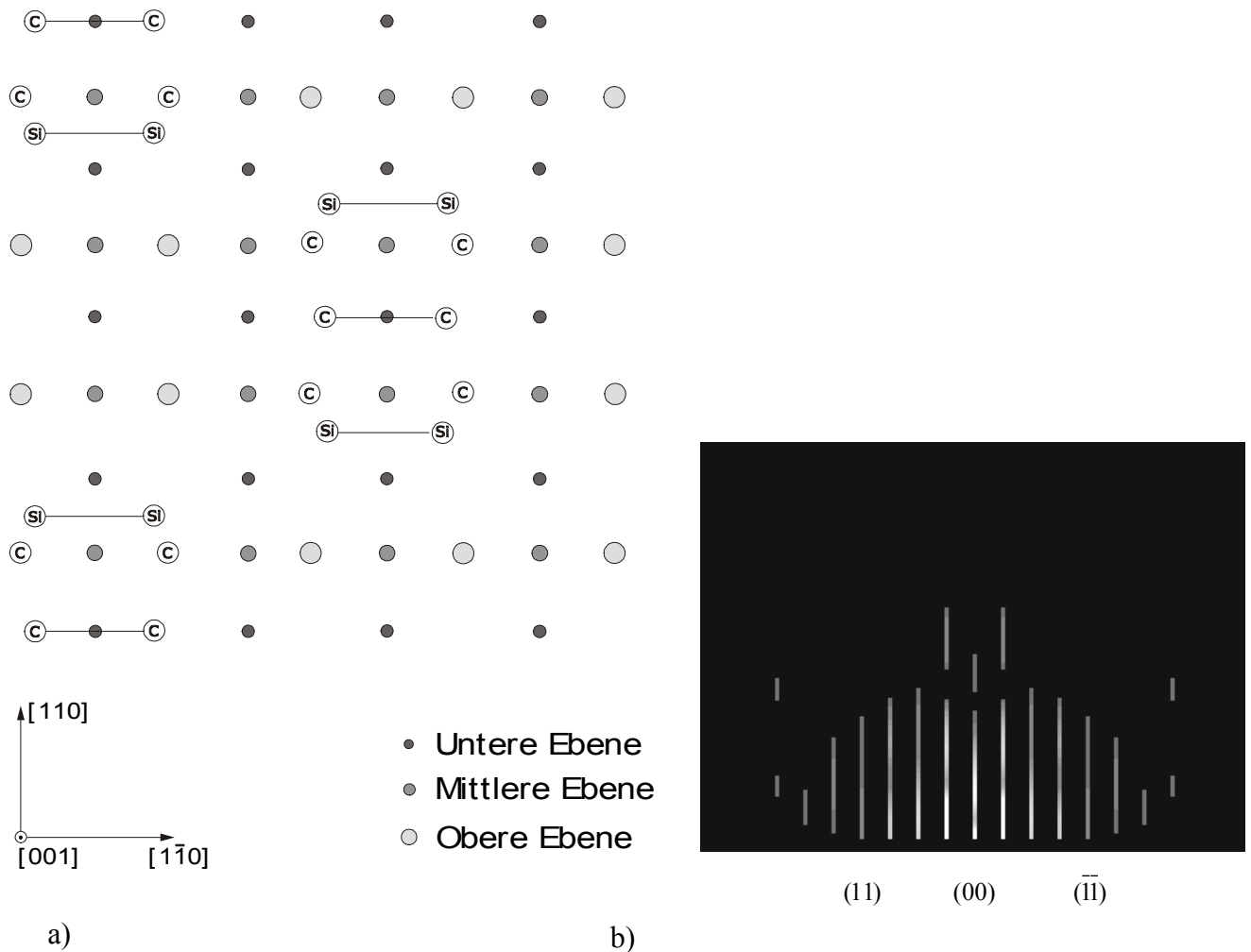


Abb. 8.3.4: a) Draufsicht auf das Modell einer $c(4 \times 4)$ mit der Dreierkonfiguration von zwei Si-Dimeren und einem C-Dimer gemäß [Lei99]. Die Kohlenstoffbedeckung beträgt 12 C-Atome pro Oberflächenelementarzelle, b) simuliertes RHEED-Bild, Azimut $[100]$

Es sind alle Rekonstruktionsstriche vorhanden. Die Länge der Rekonstruktionsstriche fällt mit zunehmendem Abstand von dem mittleren (00)-Strich ab, so wie es auch im Experiment zu beobachten ist. Die Rekonstruktionsstriche $(1/4 \ 1/4)$ und $(\bar{1}/4 \ \bar{1}/4)$ passen mit ihrem Intensitätsminimum und dem zusätzlichen Streifenabschnitt, der über den (00) – Strich hinausragt, nicht in dieses Bild. Das simulierte RHEED-Bild liefert aber insgesamt eine gute Übereinstimmung zu dem experimentellen RHEED-Bild (Abb. 7.2.1 f). Damit liefert die Anordnung der Dimere, nach den Erkenntnissen von [Lei99], einen guten Ansatz zur Erklärung der Struktur der kohlenstoffinduzierten $c(4 \times 4)$ -Struktur.

Aus der Verifizierung der Strukturmodelle für die Si(100) c(4x4)-Rekonstruktion folgt, daß mit zwei Modellen eine relativ gute Übereinstimmung zu dem experimentellen RHEED-Bild zu erzielen ist (Abb. 8.3.3 und Abb. 8.3.4). Diese Strukturmodelle benötigen beide eine Kohlenstoffbedeckung von 0,75 ML C. Der Strukturvorschlag gemäß Abb. 8.3.4 resultiert aus den STM-Untersuchungen von Lei et al [Lei99]. Bei diesen Experimenten lag die gesamte Kohlenstoff-Bedeckung auf der Si-Oberfläche bei 0,11 ML C. Die Oberfläche war nur zu rund 10 % konvertiert. Bei einer Strukturuntersuchung muß zusätzlich noch bedacht werden, daß prinzipiell die Existenz einer bestimmten Oberflächenstruktur von dem jeweiligen Kohlenstoffangebot abhängt. Eine STM-Untersuchung für eine Kohlenstoffbedeckung von 0,8 ML Kohlenstoff steht damit noch aus, was eine Entscheidung zugunsten des Strukturmodells in Abb. 8.3.3 a oder Abb. 8.3.4 a herbeiführen könnte.

8.4 Polytypanalyse von Epitaxieschichten mit RHEED

Das Ziel dieses Abschnittes besteht darin aufzuzeigen, wie mit RHEED die Polytypstruktur der Epitaxieschicht identifiziert werden kann. Einleitend wird dargestellt, wie man durch Modifikationen der Oberflächenmorphologie die Polytypstruktur von SiC-Kristallen mit atomar glatten Oberflächen oder die Struktur von langperiodischen Polytypen durch dreidimensionale Beugung bestimmen kann. Desweiteren wird das Problem der Polytypidentifikation für atomar glatte Oberflächen, d.h. unter den Bedingungen der zweidimensionalen Beugung, behandelt. In dem vorliegenden Kapitel wird der Zusammenhang zwischen der Intensitätsmodulation auf den Gitterstäben im Beugungsbild und dem Polytyp für bestimmte ausgewählte Fälle am Beispiel von 3C, 4H und 6H untersucht.

8.4.1 Dreidimensionale Beugung

Unter den Bedingungen der dreidimensionalen Beugung entstehen RHEED-Muster, die mit den Beugungsbildern in der Transmissionselektronenmikroskopie zu vergleichen sind. Die Auswertung der Geometrie der Beugungsbilder ermöglicht Aussagen über die Kristallstruktur der vorliegenden Substanz. Für den Fall der Identifikation des vorliegenden Polytypes ist dieses Verfahren in [Neu83] ausführlich beschrieben.

Die Entstehung des vollständigen Beugungsmuster, welches die Identifikation des Polytypes ermöglicht, ist eng mit der Strahleindringtiefe verknüpft. Liegt eine atomar glatte Oberfläche vor, oder ist die Strahleindringtiefe geringer als die Periodizität des Polytypes, kann die Strukturidentifikation nur eingeschränkt erfolgen. Um die Struktur des vorliegenden Polytypes zu bestimmen, ist somit eine Erhöhung der effektiven Eindringtiefe bei gleicher Beugungsgeometrie notwendig. Dies kann durch eine Aufrauung der Oberfläche erzielt werden. Dafür wurden folgende Methoden getestet: (1) Graphitisierung der Oberfläche mit anschließender Entfernung des entstandenen Graphits, (2) anodische Oxidation, (3) Plasmaätzen. Im Ergebnis der Oberflächenbehandlung entstanden Mikrorauheiten, die zu einer ausgeprägten dreidimensionalen Beugung führten und damit die Identifikation der Struktur des vorliegenden Polytypes ermöglichten. In Abb. 8.4.1.1 ist dies für die Oberflächenbehandlung durch Graphitisieren dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, daß nach der Oberflächenbehandlung neue Beugungspunkte entstehen durch die der Polytyp als 33R-SiC identifiziert werden konnte (Abb. 8.4.1.1 c), was auf den gewachsenen Oberflächen (Abb. 8.4.1.1 a und b) nicht möglich war. Vergleichbare Ergebnisse wurden auch mit den anderen beiden Methoden zur Generierung einer rauen Oberfläche erzielt. Eine Prinzipskizze für die dreidimensionalen Beugungspunkte des 33R - SiC ist in Tabelle 8.4.1.1 dargestellt.

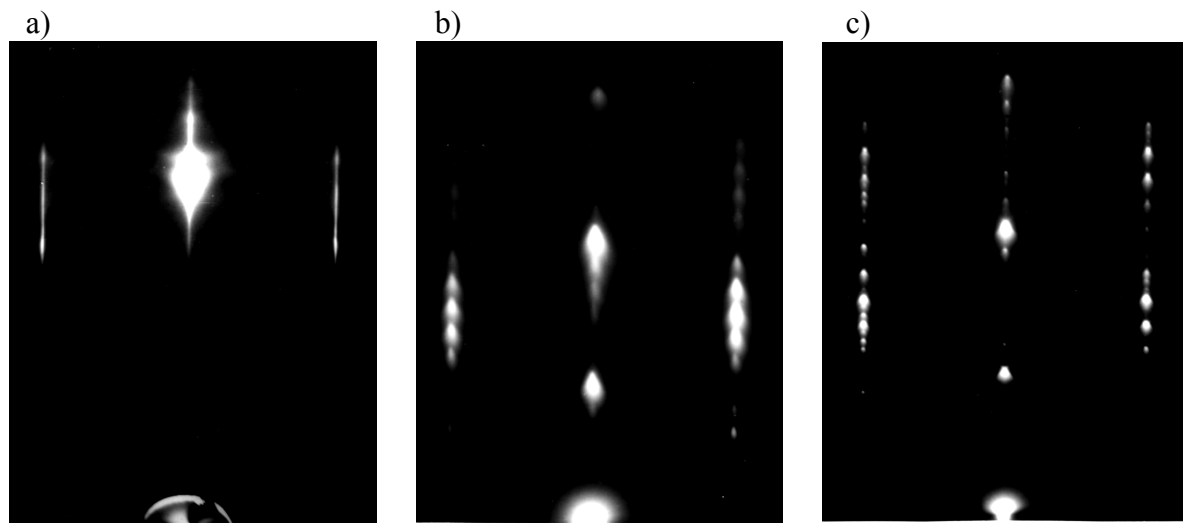


Abb. 8.4.1.1: Beugungsbilder von einem 33R-SiC Kristall von einer atomarglatten terrassenförmigen (0001)-Si-Oberfläche (a), einer welligen (000 $\bar{1}$) -C-Oberfläche mit geringer effektiver Eindringtiefe (b) und einer durch Graphitisieren modifizierten (0001)-Si-Oberfläche mit großer effektiver Eindringtiefe (c), Azimut $[1\bar{1}20]$.

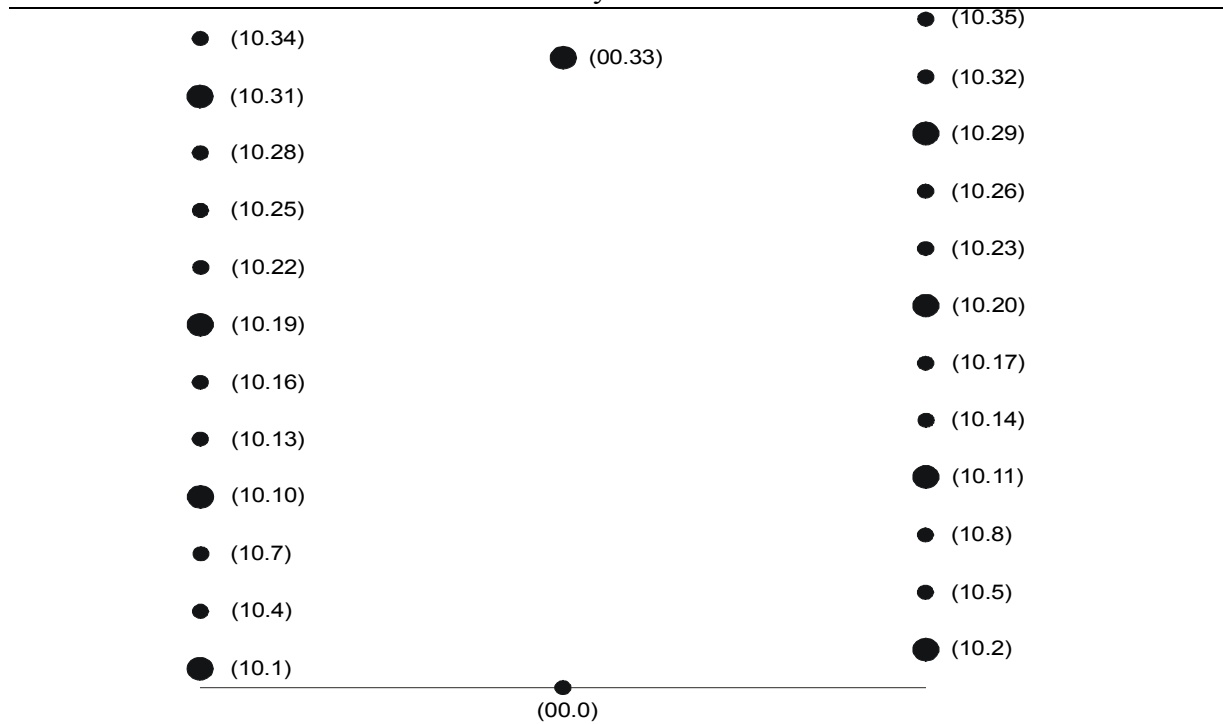


Tabelle 8.4.1.1: Prinzipdarstellung der dreidimensionalen Beugungspunkte für den 33R – SiC Polytyp im $[11\bar{2}0]$ -Azimut. Die intensitätsstarken Beugungspunkte sind durch größere Durchmesser der Kreise hervorgehoben.

8.4.2 Zweidimensionale Beugung

Es soll nun die Frage behandelt werden, inwieweit kann mit der Intensitätsmodulation auf den RHEED-Intensitätsstäben im Falle der 2D-Beugung eine Identifikation des Polytyps durchgeführt werden. Mit einer Simulation der RHEED-Intensität an dem Beispiel von 3C-, 4H- und 6H-SiC soll dieser Frage nachgegangen werden. Die Simulation wird mit dem in Abschnitt 8.1 beschriebenen semi-kinematischen RHEED-Simulationsprogramm durchgeführt. Als Azimut für die Untersuchung der Polytype wird die $[11\bar{2}0]$ -Richtung auf der hexagonalen Oberfläche gewählt, die bei der dreidimensionalen Beugung eine Unterscheidung der Polytype erlaubt. Die Beschleunigungsspannung der Elektronen wurde mit 30 kV festgelegt, das der Beschleunigungsspannung entspricht, die bei den Abscheideexperimenten in der Molekularstrahlepitaxieanlage verwendet wird. Für den Fall der dreidimensionalen Beugung ist bekannt, daß die signifikantesten Unterschiede im Intensitätsprofil in Abhängigkeit von der Struktur des Polytypes sich bei den Gitterstäben links und rechts von dem Zentralstab zeigen. Es wurden daher nur diese Profile miteinander verglichen. Bei der Simulation der SiC-Polytype muß zusätzlich der Einfluß der Polarität, d.h. C-Polarität oder Si-Polarität, auf die 2D-Beugungssimulation geklärt werden. Es wird daher zuerst der Einfluß der Polarität in Abhängigkeit von der Anzahl der in der Simulation berücksichtigten Lagen an dem Beispiel des

3C-SiC untersucht. In einem ersten Schritt wird 3C-SiC mit zwei Doppellagen einmal mit C-Polarität (Abb. 8.4.2.1 a) und zum anderen mit Si-Polarität (Abb. 8.4.2.1 b) untersucht. Auf der x-Achse der Intensitätsdarstellungen entsprechen 1,16 Einheiten des normierten Schirmprofils dem Abstand von zwei Beugungsstreifen im $[11\bar{2}0]$ Azimut auf der hexagonalen Oberfläche für alle SiC-Polytypen.

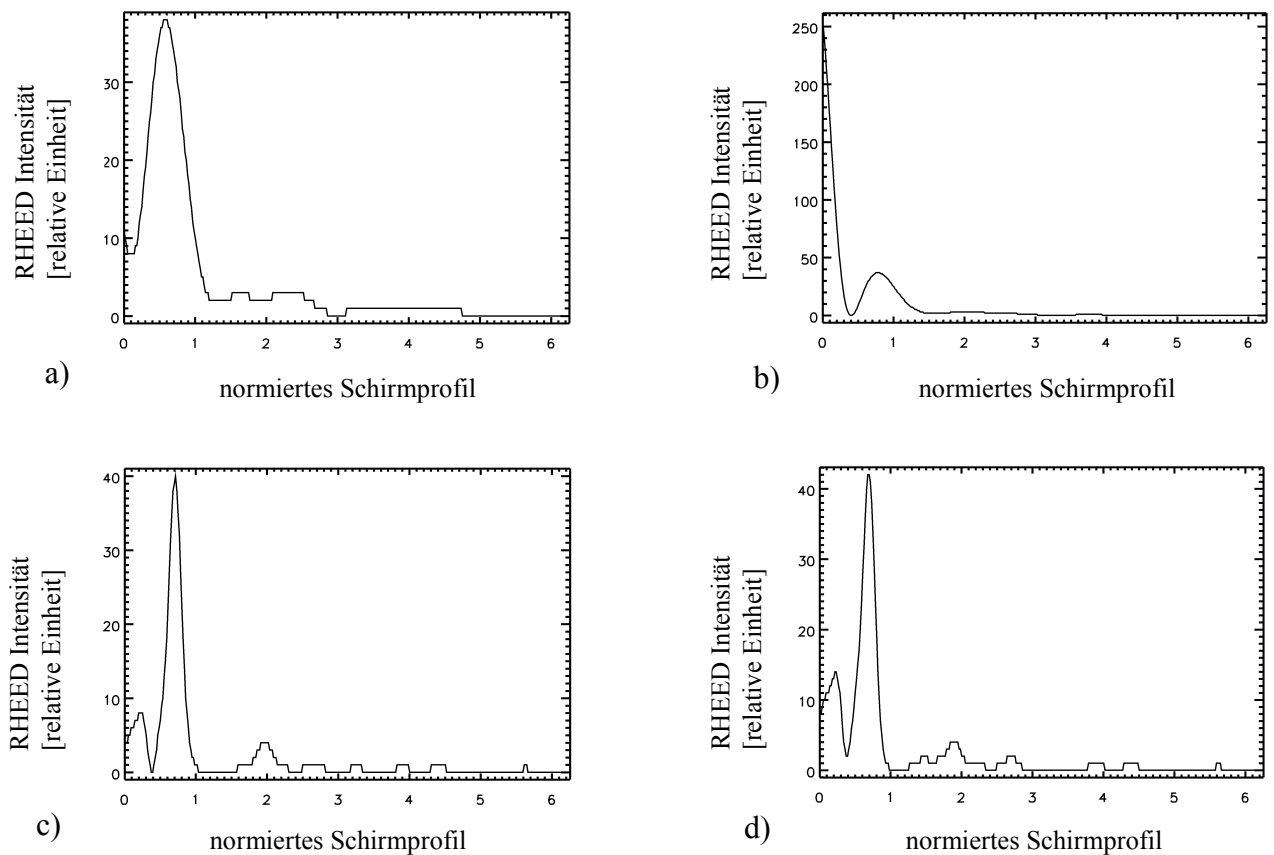


Abb. 8.4.2.1: Intensitätsprofil des (01)–Gitterstabes von 3C-SiC bei einem Einfallswinkel von $1,3^\circ$ für unterschiedliche Polaritäten der Oberfläche. a) Intensitätsprofil bei C-Polarität für zwei Doppellagen, b) Intensitätsprofil bei Si-Polarität für zwei Doppellagen, c) Intensitätsprofil bei C-Polarität für sieben Doppellagen, d) Intensitätsprofil bei Si-Polarität für sieben Doppellagen

Bei nur zwei berücksichtigten Doppellagen ergibt sich ein deutlicher Einfluß der Polarität auf die Intensitätsmodulation des Beugungsstriches. Bei einer Erhöhung der Anzahl der berücksichtigten Doppellagen in der Simulation auf 7 Doppellagen wird der Einfluß der Polarität gemäß Abb. 8.4.2.1 c und d so stark minimiert, daß er keinen signifikanten Einfluß auf die Intensitätsmodulation der Beugungsstriche hat. Daraus folgt, daß die Polarität der Oberfläche nur dann detektiert werden kann, wenn die Beugungsbedingungen eine Eindringtiefe von kleiner als sechs Doppellagen gewährleistet. Eine Erhöhung der Beschleunigungsspannung erhöht die Eindringtiefe der Elektronen in den Kristall. Nach Gleichung (5.2.1) verhält sich die Eindringtiefe in erster Näherung proportional zur Beschleunigungsspannung in dem Bereich 20 - 40 kV. Eine weitere Erhöhung der Beschleunigungsspannung über 30 kV hinaus bewirkt daher eine weitere Verringerung des Einflusses der Oberflächenpolarität auf die Intensitätsmodulation der Beugungsstriche.

Für die Untersuchung der möglichen Unterscheidbarkeit der Polytype 6H- und 4H-SiC soll von dem Fall ausgegangen werden, daß der Elektronenstrahl in die (0001)-Oberfläche der hexagonalen Polytype eindringt, da sie die bevorzugte technologische Oberfläche ist. Für die Simulation wurde eine (000 $\bar{1}$) Kohlenstoffoberfläche des SiC verwendet. Mit dem oben beschriebenen Extinktionskoeffizienten wurden die Fälle untersucht, daß zwei, vier und sieben Doppellagen einen Beitrag zur Beugung leisten. In Abb. 8.4.2.2 a und b sind die Intensitätsprofile der (01) Gitterstäbe für den $[1\bar{1}20]$ -Azimut in Abhängigkeit vom Einfallswinkel des Primärstrahls für eine Wechselwirkung mit zwei und vier Doppellagen dargestellt. Da sich die Intensitätsprofile bei identischer Anordnung der Atome im Zweischichtsystem nicht unterscheiden, wurde die atomare Anordnung der Atome so gewählt, daß sie einem 2H-Element für den Fall des 4H- und einem 3C-Element für den Fall des 6H-SiC entspricht. Die erhaltenen Intensitätsprofile (Abb. 8.4.2.2 a und b) unterscheiden sich in ihrer Profilform, daraus folgt, daß mit RHEED wie im Falle von LEED [Star95] bei einer genauen Messung der winkelabhängigen RHEED-Verläufe eine Aussage über die Lagenvariation der SiC Doppellagen im oberflächennahen Bereich getroffen werden kann. Die in Abb. 8.4.2.3 a und b dargestellten Intensitätsverläufe zeigen ebenfalls einen unterschiedlichen Intensitätsverlauf in dem betrachteten Einfallswinkelbereich des Primärstrahles. Damit erscheint es möglich mit der Hilfe von RHEED auch unter den Bedingungen der zweidimensionalen Beugung die einzelnen polytypen Strukturen zu unterscheiden. Aus der durchgeführten Simulation ergeben sich für diesen Zweck bevorzugte Einfallswinkel des Primärstrahles. Die Unterscheidbarkeit der vorliegenden Polytypstruktur ist für den Winkelbereich von 1 ... 2,5° besonders deutlich. Unabhängig von der am Beugungsprozeß beteiligten Lagenzahl ergaben sich damit Unterschiede in der Position und der Intensität der Maxima vom Intensitätsprofil, damit können diese zur Charakterisierung der vorliegenden Oberflächenstruktur herangezogen werden.

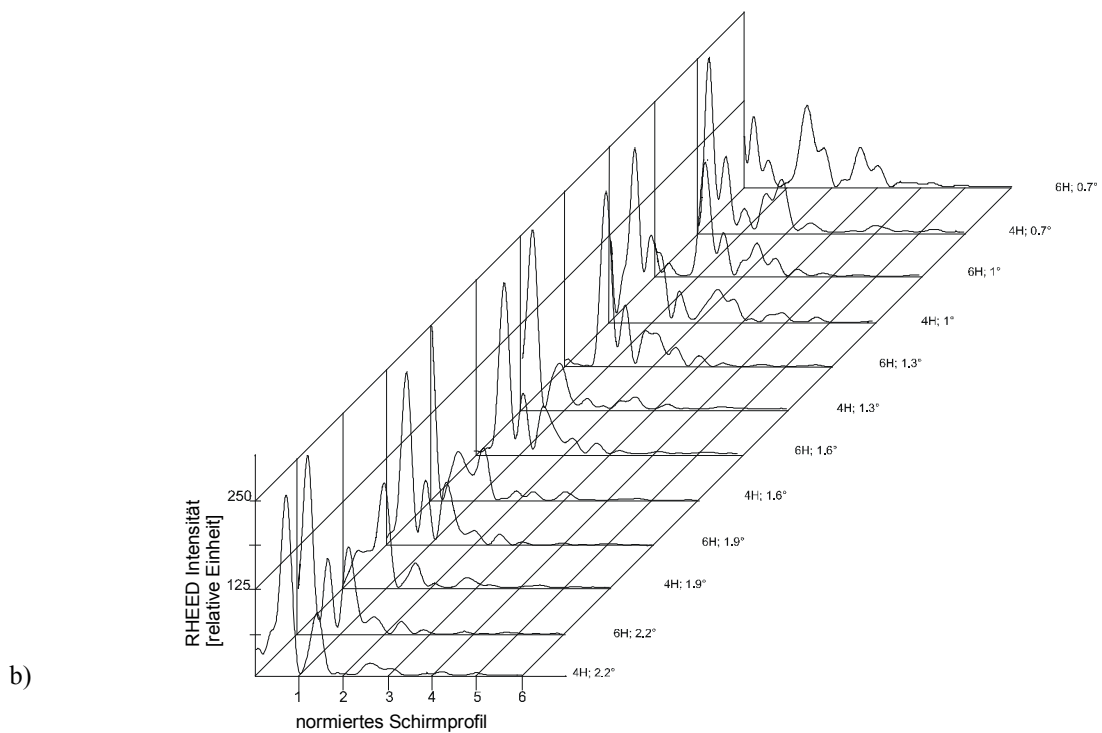
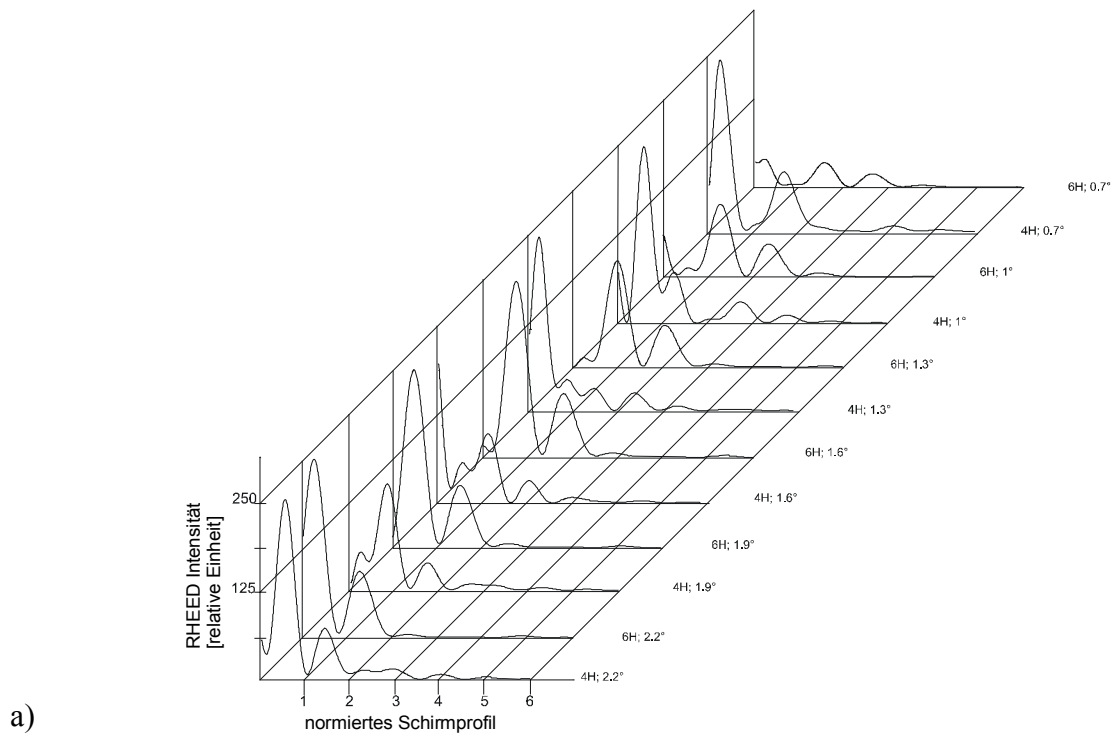


Abb. 8.4.2.2: Intensitätsprofil des (01) – Gitterstabes von 4H- bzw. 6H-SiC für eine Eindringtiefe von a) zwei Doppellagen, b) vier Doppellagen

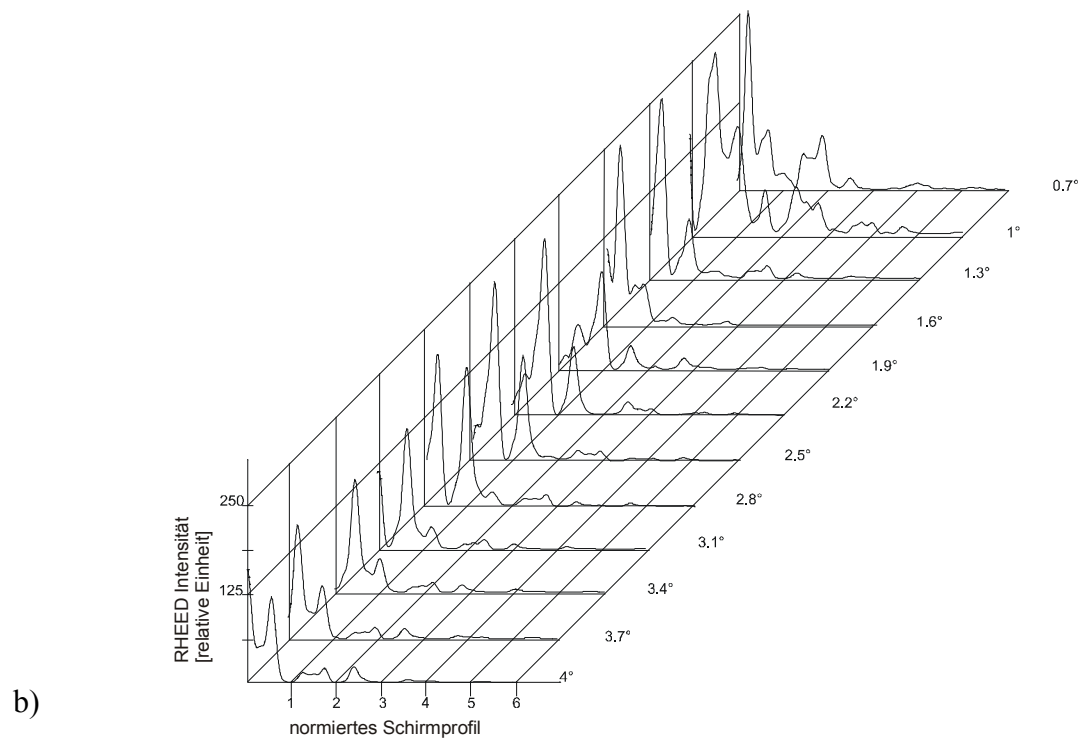
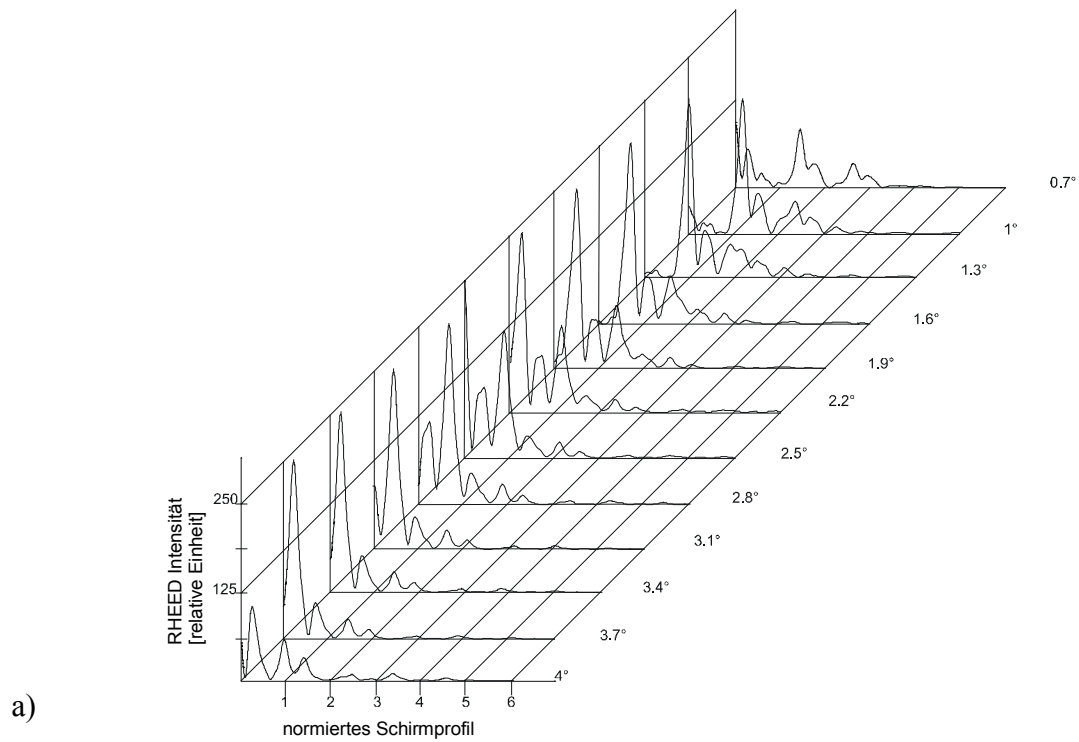


Abb. 8.4.2.3: Intensitätsprofil des (01)-Gitterstabes für 6H-SiC (a) und 4H-SiC (b) bei einer Eindringtiefe von sieben Doppellagen

8.5 Zusammenfassung der Simulationsergebnisse

- (1) Durch die Verifizierung von simulierten Strukturmodellen der $\text{Si}(111)(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$ -C-Rekonstruktion kann die exponierte Position des Kohlenstoffs auf der Si-Oberfläche als unwahrscheinlich angesehen werden. Die beste Übereinstimmung liefert eine S_5 -Positionierung des Kohlenstoffs.
- (2) Für die $\text{Si}(100) c(4 \times 4)$ -C-Rekonstruktion konnte eine gute Übereinstimmung zu dem experimentellen RHEED-Bild mit Strukturvorschlägen, die C-Dimere auf der Oberfläche enthalten, erreicht werden. Es zeigte sich, daß bestimmte Strukturmodelle für die $\text{Si}(100)c(4 \times 4)$ -C-Rekonstruktion ausgeschlossen werden konnten. Der Strukturvorschlag von [Lei99] wurde erstmalig mit RHEED verifiziert. Die Angaben in [Lei99] zum Kohlenstoffeinbau in die Elementarzelle konnten korrigiert werden.
- (3) Die Oberflächenpolarität von SiC-Epitaxieschichten kann nur dann detektiert werden, wenn die Beugungsbedingungen eine Eindringtiefe von kleiner als sechs Doppellagen gewährleisten.
- (4) Die Identifikation von SiC-Polytypen kann durch Modifikationen der Oberflächenmorphologie zur Erzeugung der 3D-Beugung oder durch Analyse der Intensitätsverläufe bei der zweidimensionalen Beugung ermöglicht werden. In beiden Fällen muß der Elektronenstrahl die charakteristische Periodizität des SiC-Polytyps erfassen.

9 Untersuchungen zur Keimbildung von SiC auf Si

Nach den ersten kohlenstoffinduzierten Transformationen der Oberfläche setzt SiC-Keimbildung ein. Die ersten Stadien der SiC-Keimbildung sind sowohl von wissenschaftlichem als auch von technologischem Interesse. Das technologische Interesse an einer SiC-Wachstumsbeschreibung richtet sich neben der Verbesserung der nachfolgenden Epitaxie auf die Bildung von SiC-Keimen im Nanometerbereich und deren Gesetzmäßigkeiten. Das Ziel ist es, ein Modell für die Initial-SiC-Bildung auf der Si(100)- und Si(111)-Oberfläche zu entwickeln. Zu diesem Zweck werden AFM-, Transmissionselektronenmikroskopie (TEM)- und RHEED-Untersuchungen eingesetzt. Nach der Untersuchung der Zusammenlagerung von Si- und C-Atomen zu einem stabilen Keim auf atomarer Ebene, wird die Herausbildung von größeren SiC-Keimen und deren Wachstumsmechanismen betrachtet.

9.1 Bestimmung der kritischen Keimgröße für das SiC-Wachstum

Der Beginn des SiC-Wachstums auf atomarer Ebene ist durch die Bildung von stabilen Clustern gekennzeichnet. Die Stabilität der SiC-Cluster hängt von der Anzahl der involvierten Atome ab. In der thermodynamischen Theorie ist dies mit der Gibbschen Energie quantifizierbar [Söh92]. Es existiert eine Cluster- oder Keimgröße ab der das stabile Wachstum wahrscheinlicher ist als der Zerfall. Die Keimgröße, charakterisiert durch die Anzahl von i Atomen, die gerade unterhalb dieser stabilen Keimgröße liegt wird als kritischer Keim bezeichnet.

In der Literatur [Sch97] existiert eine thermodynamische Beschreibung, die die Anzahl von stabilen Inseln pro Fläche als Funktion der Depositionsrate j_C , der Temperatur und der kritischen Keimgröße i beschreibt. Bei fortschreitendem Wachstumsprozess wachsen die Keime zusammen. Die direkte Methode zur Bestimmung der kritischen Keimgröße geht daher von der Ermittlung der Keimdichte zu einem Zeitpunkt aus, der deutlich vor diesem Zusammenwachsen liegt, aus. Für die Auszählung der Keime ist ein direkt abbildendes Instrument wie STM, REM, TEM oder das AFM geeignet. Diese Instrumente müssten aber *in situ*, also bei Temperaturen zwischen 550°C - 1000°C im UHV, eingesetzt werden und dürfen gleichzeitig den Abscheideprozeß nicht stören. Daher gibt es derzeit nur vereinzelt technologische *in situ* Realisierungen dieser Meßtechniken. In der Literatur [Voi97] existiert für das STM eine Entwicklung, die es erlaubt, bis 600°C im UHV das Si-Wachstum zu beobachten. Damit ist es gelungen, anhand der Beobachtung der Anfangsstadien des Si-Wachstums eine kritische Keimgröße $i=1$ auf der Si(100)-Oberfläche und $i=6$ auf der Si(111)-Oberfläche mit dem Modell von [Sch97] zu bestimmen. Die Keimdichte n_i verhält sich bei konstanter Prozeßtemperatur und variabler Depositionsrate j_C gemäß folgender Proportionalität:

$$n_i \propto \left(\frac{j_c}{u_s} \right)^{i/(i+2)} \quad (9.1.1)$$

Für die Ausbildung der Keime muß auch die Schwingungsfrequenz u_s der Atome, von der Größenordnung der Debye-Frequenz ($\approx 10^{13} \text{ s}^{-1}$), in die Berechnung der Keimdichte einfließen. Dieser Ausdruck gilt für die vollständige Kondensation. Dies bedeutet, daß die Desorption des Kohlenstoffs von der Si-Oberfläche klein gegenüber der Einfangrate von Kohlenstoffmonomeren auf der Si-Oberfläche ist. In dem Temperaturbereich von 600°C – 800°C ist dies wegen der hohen Sublimationstemperatur von Kohlenstoff mit 3370°C [Hol85] erfüllt. Dies wurde von [Cim99] anhand von Wachstumsuntersuchungen mit AFM für diesen Temperaturbereich bestätigt. Für eine *ex situ* Bestimmung der Keimdichte mit AFM und einer anschließenden Auswertung gemäß Gleichung (9.1.1) muß man von der Annahme ausgehen, daß die Keimdichte, welche mit AFM detektiert wird, proportional zu der Keimdichte im Anfangsstadium der Karbonisierung ist. Die Variation der C-Rate wird sowohl für die Si(111)- als auch für die Si(100)-Oberfläche für zwei unterschiedliche Prozeßtemperaturen vorgenommen. Das Produkt aus C-Rate und Zeit war bei den durchgeführten Experimenten konstant. Inwieweit die mit der Gleichung (9.1.1) aus den experimentellen Bestimmungen für die Keimdichte sich ergebenden kritischen Keimgrößen kristallographisch sinnvoll sind, zeigt sich bei den folgenden Auswertungen.

Sowohl die Bestimmung der kritischen Keimgröße auf der Si(111) – als auch auf der Si(100)-Oberfläche wurde für zwei Prozeßtemperaturen durchgeführt. In der Abb. 9.1.1 sind exemplarisch einige AFM-Bilder für die Auswertung der Karbonisierungsexperimente auf der Si(111)-Oberfläche bei 660°C dargestellt. Deutlich zu erkennen ist die Zunahme der Keimdichte bei Erhöhung der Kohlenstoffrate. Die Zusammenstellung der ermittelten Inseldichten für 660°C und 770°C befindet sich in Abb. 9.1.2. Die Keimdichte ist eine Potenzfunktion der Rate mit dem Exponenten $i/(i+1)$ gemäß Gleichung (9.1.1). In doppeltlogarithmischer Auftragung der Inseldichte als Funktion der Rate kann die kritische Keimgröße i aus der Steigung der Fitgeraden bestimmt werden.

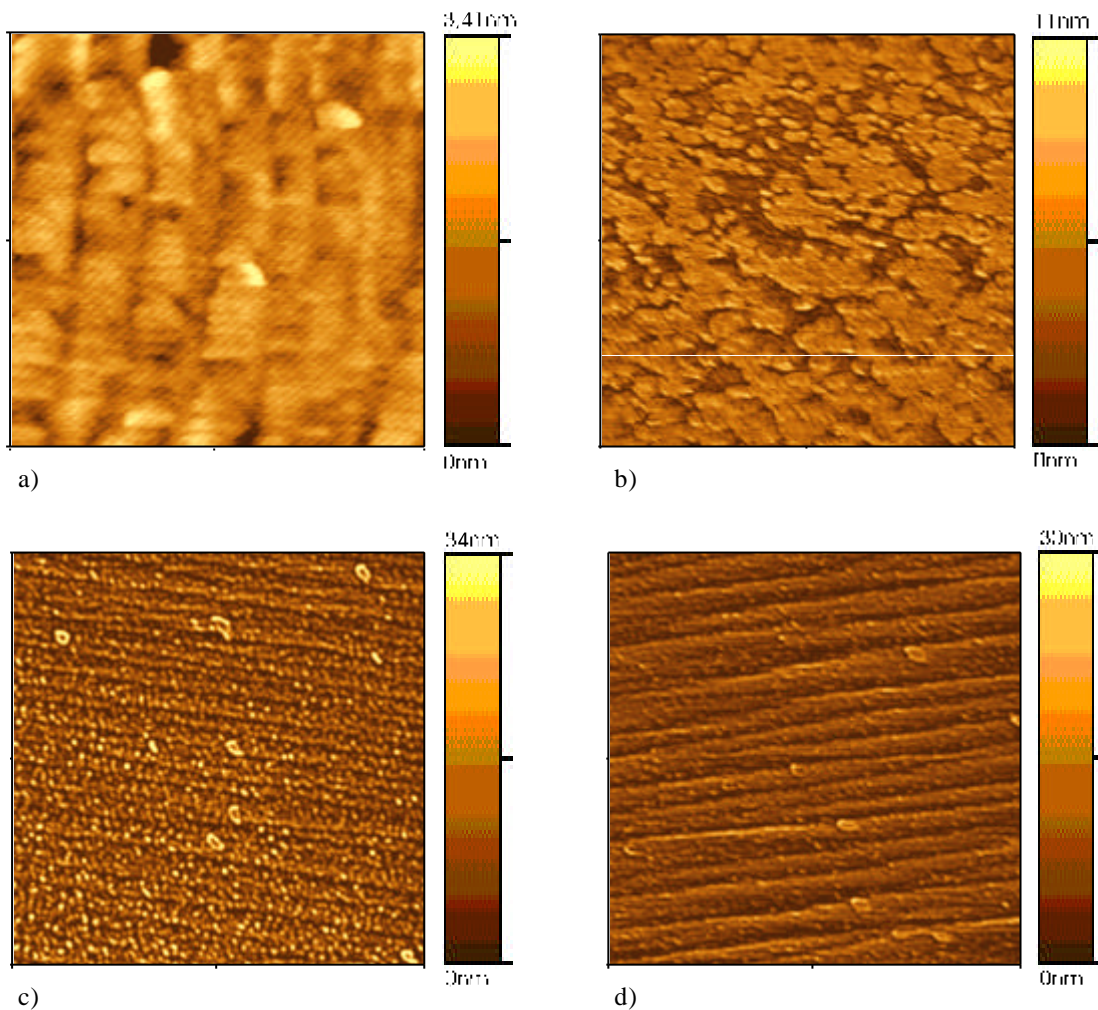


Abb. 9.1.1: AFM Bilder ($1 \times 1 \mu\text{m}^2$) nach Karbonisierung auf der Si(111)-Oberfläche bei einer konstanten Temperatur von 660°C , C-Rate: a) $C=0,3$, 6000 s, b) $C=3$, 600s, c) $C=30$, 60 s, d) $C=100$, 30 s

In der Abb. 9.1.2 a sind zur Veranschaulichung Fitgeraden für $i=7$ und $i=5$ eingetragen. Die eingeschachtelte Fitgerade mit $i=6$ entspricht dem experimentell ermittelten Verhalten der Keimdichten am besten. Dieses Verhalten zeigt sich auch bei einer Prozeßtemperatur von 770°C in Abb. 9.1.2 b. Die Meßwerte für die Keimdichte streuen in dieser Darstellung, verglichen mit der für 660°C , mehr. Eine obere und untere Fitgerade zur Einschachtelung der experimentellen Keimdichten, die der kritischen Keimgröße $i=9$ und $i=3$ entsprechen, lassen zumindest den Schluß zu, daß die kritische Keimgröße von $i=6$ im Toleranzbereich dieser Einschachtelung liegt.

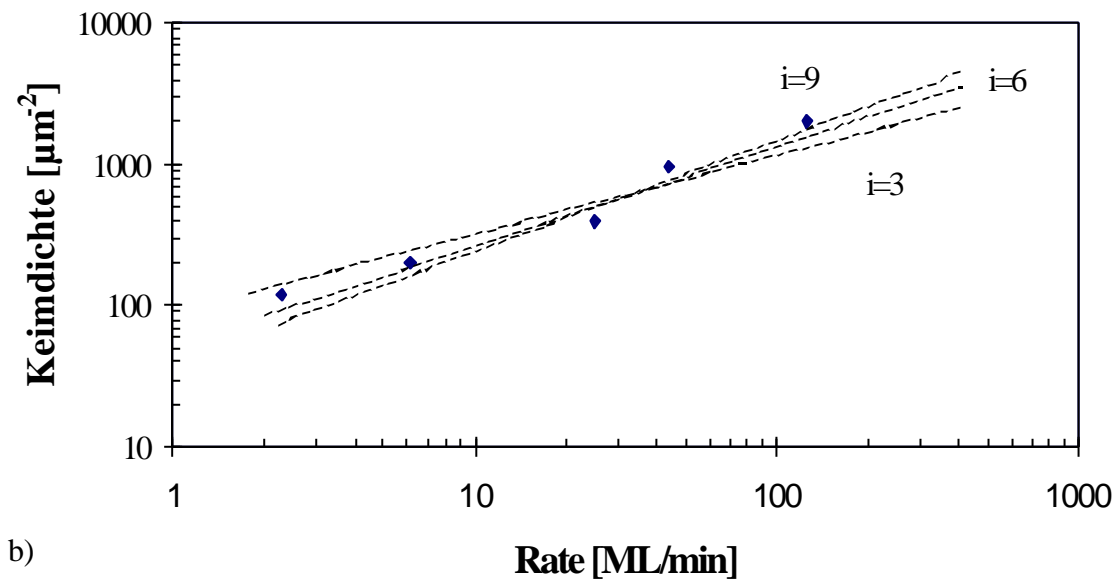
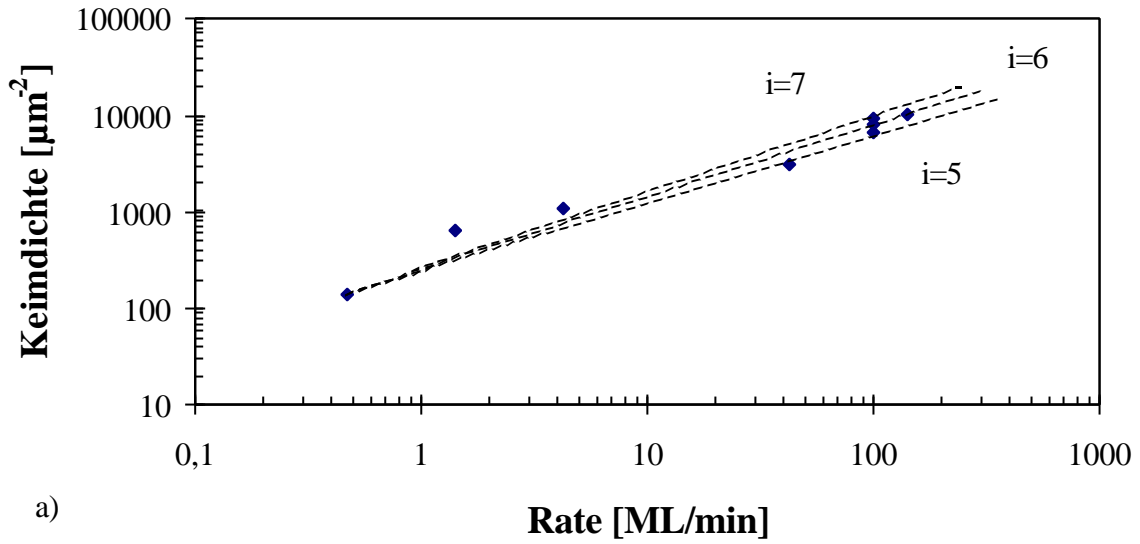


Abb. 9.1.2: Keimdichte in Abhängigkeit von der Rate für die Si(111)-Oberfläche, kritische Keimgröße i a) für 660°C, b) für 770°C

Auf der Si(100)-Oberfläche ist sinngemäß die gleiche Untersuchung durchgeführt worden. Die Keimdichte, in Abhängigkeit von der Rate, läßt auch hier einen Schluß auf die kritische Keimgröße gemäß folgender Darstellung zu.

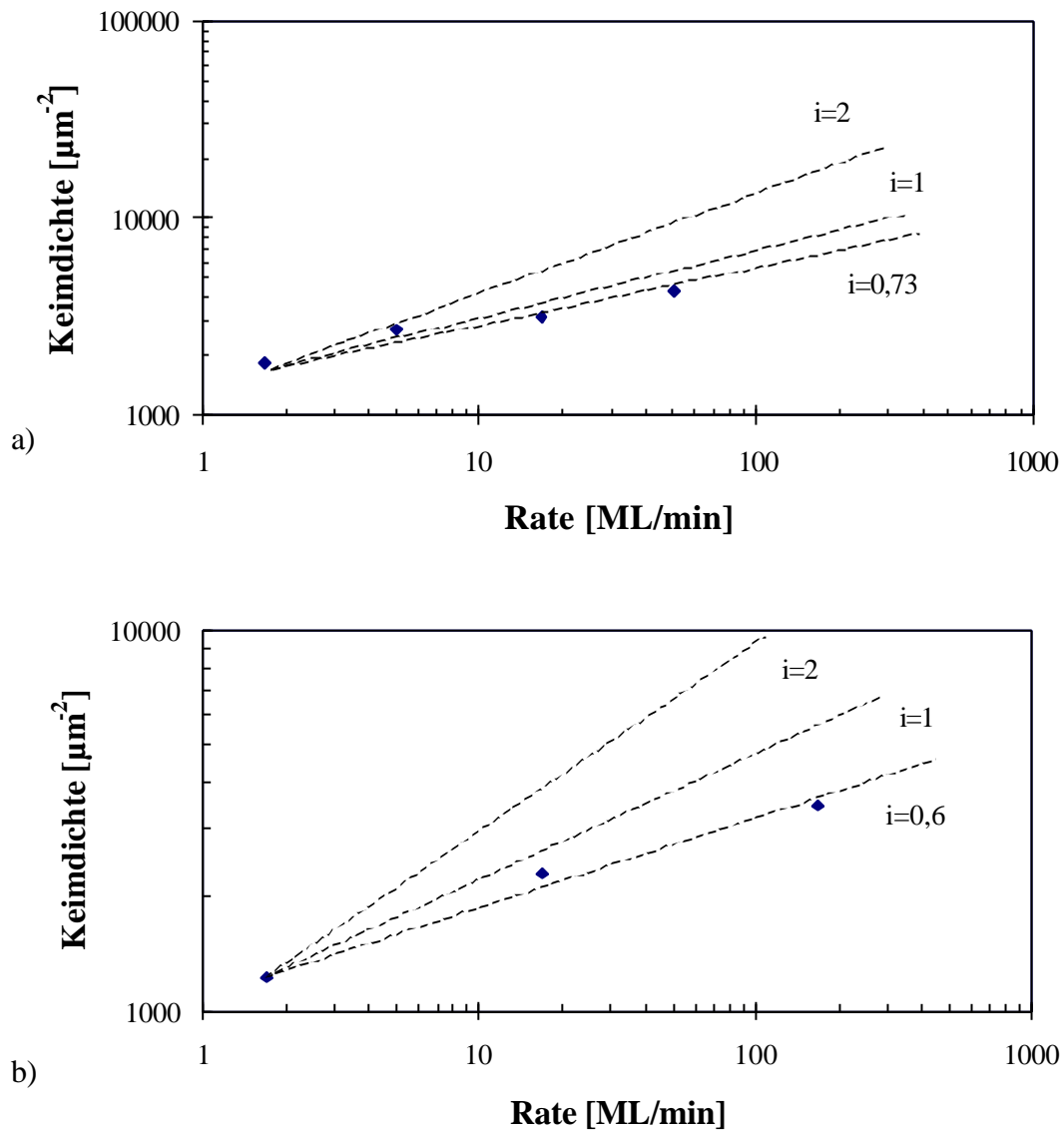


Abb. 9.1.3: Keimdichte in Abhängigkeit von der Rate für die Si(100) – Oberfläche, kritische Keimgröße i a) für 660°C, b) für 750°C

Aus Abb. 9.1.3 a für 660°C geht hervor, daß der Fit für die Keimdichte in Abhängigkeit von der Rate einen Wert von $i = 0,73$ liefern würde. Da der kritische Keim beim epitaktischen Aufwachsen nur aus ganzen Atomen bestehen kann, sind gemäß der angewandten Wachstumstheorie von [Sch97] nur ganze Zahlen sinnvoll und mit dem experimentellen Wert $i = 0,73$ kann $i = 0$ ausgeschlossen werden. Aus der Abb. 9.1.3 a ist zu ersehen, daß der Wert $i = 1$ die Zunahme der Keimdichte in Abhängigkeit von der Rate deutlich besser anfittet als $i = 2$ auf der Si(100)-Oberfläche. Für eine höhere Prozeßtemperatur von 750°C Abb. 9.1.3 b zeigt sich ebenfalls, daß die Keimdichte mit $i = 1$ besser angefittet wird als mit $i = 2$. Für die Si – Epitaxie ist von [Sch97] auf der Si(100)-Oberfläche ebenfalls ein Wert von $i = 1$ gefunden worden.

Sowohl die Diamantstruktur des Siliziums als auch die Zinkblendestruktur des 3C-SiC kann gedanklich jeweils in zwei kubisch flächenzentrierte Gitter zerlegt werden. Im dem Fall von Silizium würden die beiden kubisch flächenzentrierten Gitter aus Si-Atomen bestehen. Bei dem 3C-SiC würde ein Gitter aus Si- und das andere aus C-Atomen bestehen. Diese kristallographische Verwandtschaft macht eine kritische Keimgröße $i=1$ für das 3C-SiC-Wachstum auf Si(100) sinnvoll. Entsprechendes gilt für die kritische Keimgröße von $i=6$ für die 3C-SiC-Bildung auf der Si(111)-Oberfläche in Abb. 9.1.2. In der Literatur findet sich eine Angabe zur Ratenabhängigkeit der Keimdichte von Ge auf der Si(111)-Oberfläche [Shk98]. Eine Umrechnung dieser Angaben mit der Theorie von [Sch97] würde eine kritische Keimgröße von $i=6$ liefern. Da Germanium die Diamantstruktur aufweist ergibt sich zusammen mit den Untersuchungen in [Voi97], daß die kritische Keimgröße wesentlich durch die Kristallstruktur bestimmt wird. Falls kein epitaktisches Aufwachsen auf dem Substrat möglich ist, z.B. Ge auf amorphem Siliziumoxid, so liegt die kritische Keimgröße bei $i=0$ [Shk00].

9.2 Untersuchungen zum SiC-Initialwachstum auf Si

Die SiC –Bildung und das Wachstum während des Karbonisierungsprozesses von Silizium kann grob in zwei Temperaturbereiche in Abhängigkeit von dem Kohlenstofffluß unterteilt werden [Cim98a, Att99, Ven75]. Bei Substrattemperaturen unterhalb von 800°C und den in der SSMBE eingestellten Kohlenstoffflüssen entspricht der SiC-Bildungsprozeß der einer vollständigen Kondensation. Dabei bleibt die Si-Oberflächenmorphologie während dieser Initialstadien des Wachstums erhalten. Bei Substrattemperaturen oberhalb von 800°C tritt eine Sublimation von Silizium und von bereits auf der Oberfläche deponierten Kohlenstoff auf. Dies führt zu einem 3D-Wachstum, das mit einer unvollständigen Kondensation beschrieben werden kann. Das 3D-Wachstum führt zu einer Aufrauhung und Facettierung und damit in der Endkonsequenz zu einer Verschlechterung der Oberflächenmorphologie. Das SiC-Initialwachstum soll daher bei Temperaturen unterhalb von 800°C durchgeführt werden, bei dem die SiC-Keime in den oberflächennahen Bereichen eingebettet sind und ein quasi 2D-SiC-Wachstum erreicht werden kann. Daher wird im folgenden das Initialwachstum von SiC in dem Bereich zwischen 550°C - 800°C für die beiden technologisch interessanten Si-Oberflächen Si(100) und Si(111) untersucht.

9.2.1 Auswertung der SiC-Inkubationszeit

Die 3C-SiC-RHEED-Intensität ist erst nach einer bestimmten Inkubationszeit t_i zu beobachten (Abb. 7.1.2 und Abb. 7.2.2). Die Inkubations- oder Totzeit der 3C-SiC-Bildung wird von zwei Prozessen bestimmt. Der eine bestimmt die notwendige Zeit für die Bildung der kritischen Keime und der andere im Erreichen der für die Detektierbarkeit mit RHEED notwendigen Mindestgröße r_{vis} . Für die RHEED-Auswertung wurde auf der Si(111)-Oberfläche der (111)-SiC-Beugungspunkt und auf der Si(100)-Oberfläche wurde der (202)-SiC-Beugungspunkt für die zeitliche Ermittlung des Intensitätsverhaltens herangezogen. Auf der Si(100)-Oberfläche konnte der (200)- oder (400)-Beugungspunkt nicht verwendet werden, da diese durch den reflektierten Strahl sowie Kikuchilinien überlagert werden. Die Intensität der ausgewählten Beugungspunkte reagiert besonders empfindlich auf SiC-Bildung im Initialstadium.

Die Inkubationszeit t_i kann in erster Näherung in zwei charakteristische Zeiten t_f und t_g zerlegt werden. Die Zeit t_f ist die Zeit, die für die Bildung eines kritischen Keims notwendig ist. Je nach Analyseverfahren muß der Keim eine bestimmte Größe erreichen, damit er detektierbar ist. Für RHEED kann man gemäß den Simulationen von [Gif95] davon ausgehen, daß der Keimradius r_{vis} eine laterale Ausdehnung von mehr als 1 nm haben muß. Die Wachs-

tumszeit t_g des Keims macht also in diesem Fall einen wesentlichen Anteil der Inkubationszeit aus. Für den Fall, daß t_g gegenüber t_f dominiert, kann gemäß [Söh92] auf den Wachstumsmodus des Keims geschlossen werden. Damit wird der Wachstumsprozeß primär durch einen Oberflächenintegrationsmechanismus und nur sekundär von einem Diffusionsprozeß kontrolliert. Es wird hier zwischen mononuklearem und polynuklearem Wachstum des Keims unterschieden. Unter mononuklearem Wachstum versteht man das Wachstum einer kompletten Kristallage auf dem Primärkeim, ausgehend von einer Sekundärnukleation. Wird die Kristallage durch das laterale Wachstum von mehreren Sekundärkeimen auf einem Primärkeim erzeugt, so spricht man von dem polynuklearen Wachstum. In der Abb. 9.2.1.1 ist dies am Beispiel des polynuklearen Wachstums dargestellt.

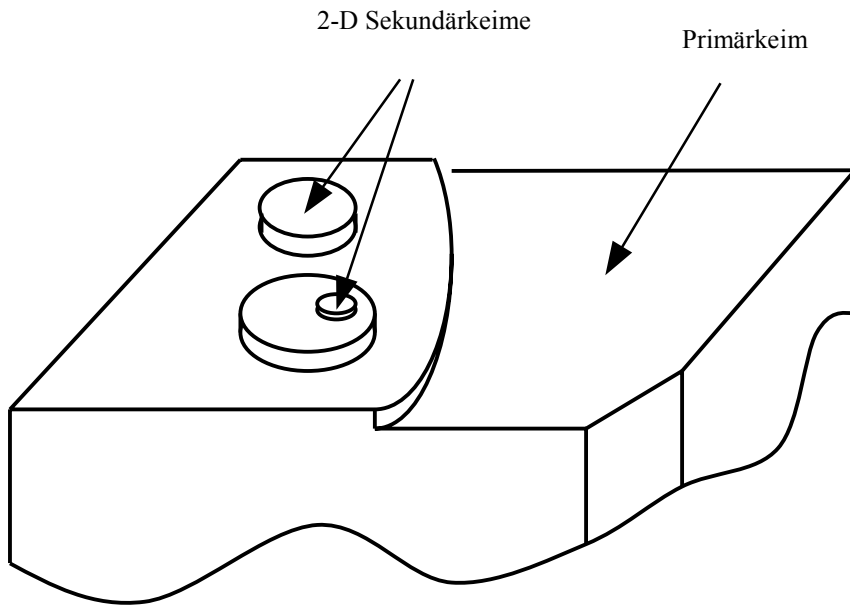


Abb. 9.2.1.1: Polynukleares Wachstum des Primärkeimes

Der Primärkeim ist in der oberflächennahen Silizium-Kohlenstofflegierungsphase $\text{Si}_{1-x}\text{C}_x$ eingebettet [Sch00]. Sobald sich die 2D-Sekundärkeime durch laterales Wachstum seitlich berühren, ist das Wachstum einer Kristallage beim polynuklearen Wachstum abgeschlossen. Für die Inkubationszeit des mononuklearen Nukleationsmechanismus gilt:

$$t_i = (H_m \cdot T \cdot \ln(S) / D_s) \exp\left(\frac{\beta \gamma^2 v^{4/3}}{(kT)^2 v \ln S}\right) \quad (9.2.1.1)$$

$$\text{mit: } S = \frac{c}{c_{eq}} \quad (9.2.1.2)$$

$$H_m = \frac{R_G \cdot v \cdot d^3}{24 \cdot \vartheta \cdot \gamma} \quad (9.2.1.3)$$

Der Vorfaktor H_m ist ratenunabhängig, besitzt keine Abhängigkeit von der Temperatur T und stellt damit für diese Betrachtungen nur einen Proportionalitätsfaktor dar. Die Diffusion des Kohlenstoffs in den oberflächennahen Lagen wird mit D_S in der Gleichung (9.2.1.1) berücksichtigt. Die Größe γ repräsentiert die Oberflächenenergie des 3C-SiC, die $1,742 \text{ mJ/m}^2$ beträgt [Fis00]. Der geometrische Faktor β beträgt für runde Keime π . Die Größe $v=2$ beschreibt die Anzahl von Atomen in der asymmetrischen Einheit der 3C-SiC-Zinkblendestruktur. Das Volumen dieser asymmetrischen Einheit wird mit ϑ angegeben. Aus dem Radius des Siliziumatoms ($r=1,17 \text{ Angström}$) und des Kohlenstoffs ($r=0,77 \text{ Angström}$) kann das Volumen zu $8,6211418 \cdot 10^{-30} \text{ m}^3$ berechnet werden [Hol85]. Mit R_G wird die allgemeine Gaskonstante bezeichnet. Die Größe S beschreibt die Übersättigung in der Umgebung des Keims gegenüber der Gleichgewichtskonzentration $c_{eq} \text{ (mol/m}^3 \text{)}$. Die Inkubationszeit im Falle der Polynukleation ist gegeben durch:

$$t_i = \left[H_p / (D_S \cdot (c - c_{eq})^{2/3}) \right] \exp \left[\frac{\beta \gamma^2 \vartheta^{4/3}}{3(kT)^2 v \ln S} \right] \quad (9.2.1.4)$$

$$\text{mit: } H_p = \frac{r_{vis}}{\vartheta^{1/3}} \quad (9.2.1.5)$$

Der Vorfaktor H_p ist raten- und temperaturunabhängig. Eine temperaturabhängige Simulation ist mit diesem Gleichungssatz prinzipiell möglich. Da die Übersättigung S und der Oberflächendiffusionskoeffizient D_S eine Temperaturabhängigkeit aufweisen, die in diesem nichtlinearen Gleichungssystem immer in Kombination auftreten, können die Aktivierungsenergien dieser Größen nicht durch Anfitten einzeln ermittelt werden.

Für die Simulation muß die Übersättigung in geeigneter Weise festgelegt werden. Die Übersättigung S des Kohlenstoffs im Silizium für den oberflächennahen Bereich kann wegen fehlender Daten nur von der Größenordnung her eingegrenzt werden. Nach den Angaben von [Bea71] liegt die Gleichgewichtslöslichkeit des Kohlenstoffs im Si-Volumenmaterial für 660°C bei 10^{-13} cm^{-3} . Durch die Verspannungen im oberflächennahen Bereich kann sich die Löslichkeit gemäß den theoretischen Berechnungen von [Ter95] um bis zu 4 Größenordnungen in den obersten vier Lagen erhöhen. Andererseits wurde mit XPD-Messungen die Koh-

lenstoffmenge in den obersten vier Lagen während des RHEED-Intensitätsmaximums der Si(100) c(4x4)-C Rekonstruktion mit näherungsweise 0,8 ML Kohlenstoff ermittelt [Kos98]. Mit eigenen XPS-Messungen konnte für das RHEED-Intensitätsmaximum der ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30°-C ein ähnlicher Wert von rund 1 ML Kohlenstoff gefunden werden. Es kommt aber noch erschwerend hinzu, daß der Zusammenhang zwischen dem C-Einbau in die oberflächennahen Si-Lagen und dem eingestellten C-Fluß in der MBE ebenfalls unbekannt ist. Eine Untersuchung zu dieser Fragestellung steht derzeit in der Literatur noch nicht zur Verfügung. Damit kann die Übersättigung nur als reiner Fitparameter fungieren. Für die folgenden Untersuchungen soll die Übersättigung als proportional zur Rate betrachtet werden. Für die Rate 3 wird während des SiC-Initialwachstums ein Wert von $S = 800$ angenommen und die anderen Übersättigungen entsprechend dem Ratenverhältnis festgelegt.

In den Abb. 9.2.1.2 a und b wurden gemäß Gleichung (9.2.1.1) und Gleichung (9.2.1.4) die simulierten Werte mit den experimentellen Werten verglichen. Da der C-Diffusionskoeffizient D_S während des SiC-Initialwachstums in den oberflächennahen Lagen derzeit noch unbekannt ist, kann nur das Gesamtverhalten der Inkubationszeit in Abhängigkeit von dem Kohlenstofffluß miteinander verglichen werden. Die experimentell ermittelten Inkubationszeiten sind durch eine Ausgleichskurve, errechnet nach dem mittleren Fehlerquadrat, angefügt worden. Sowohl für die Karbonisierung der Si(111)- als auch der Si(100)-Oberfläche bei 660°C zeigt sich, daß der experimentelle Kurvenverlauf durch die errechneten Inkubationszeiten, gemäß dem mononuklearen Nukleationsmechanismus, am besten wiedergegeben wird. In der doppeltlogarithmischen Darstellung zeigen die Inkubationszeiten, gemäß dem polynuklearen Nukleationsmechanismus, einen linearen Anstieg. Die Ausgleichskurve für die experimentellen Werte weicht von diesem Kurvenverlauf deutlich ab. Es liegt damit sowohl bei der Si(111)- als auch bei der Si(100)-Oberfläche ein mononuklearer Nukleationsmechanismus vor.

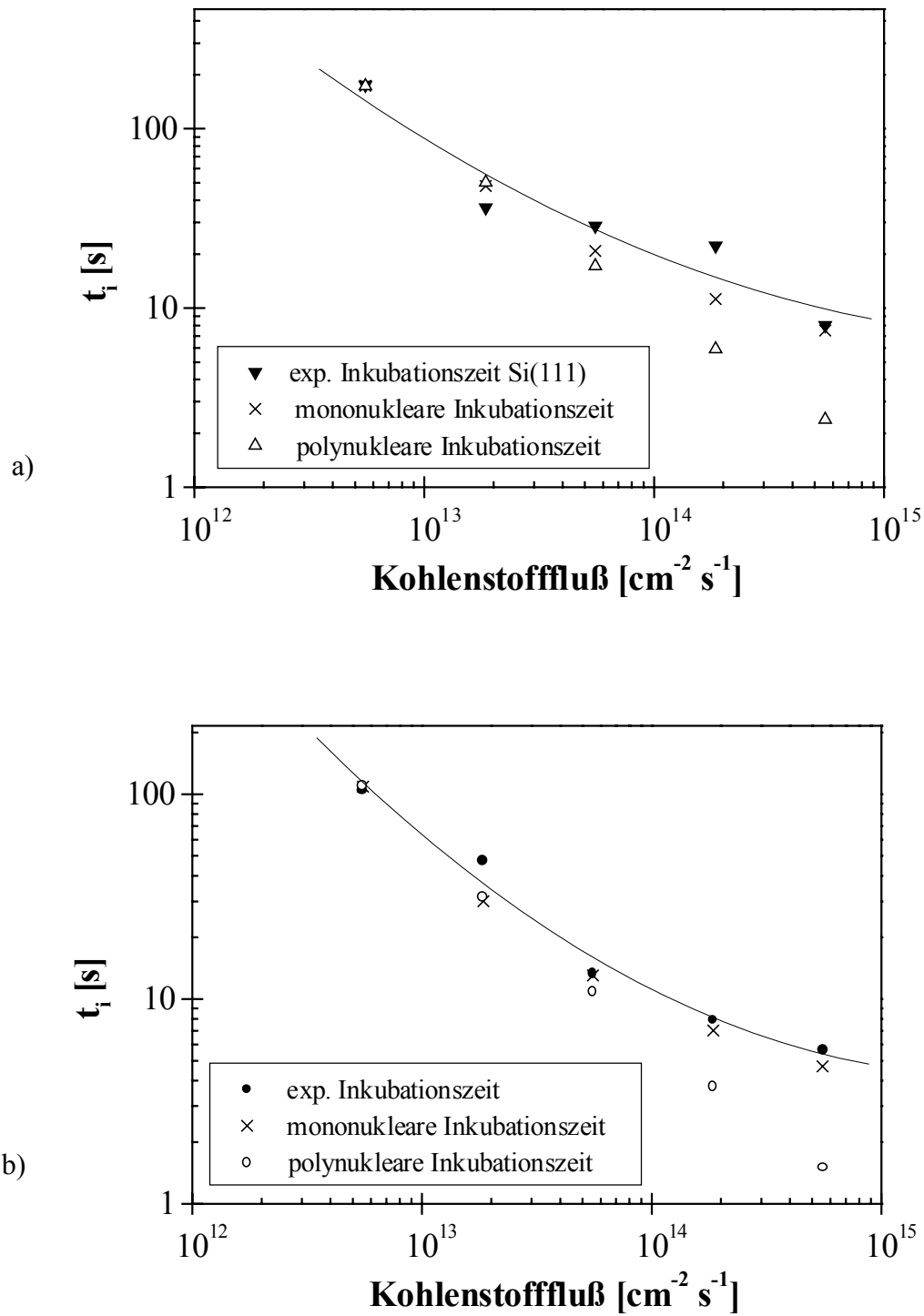


Abb. 9.2.1.2: Inkubationszeit für die SiC-Bildung in Abhängigkeit von dem Kohlenstofffluß bei einer Prozeßtemperatur von 660°C: a) auf der Si(111)-Oberfläche, b) auf der Si(100)-Oberfläche

9.2.2 Auswertung der 3C-SiC-RHEED-Intensitätsanstiegszeit

Nach der Auswertung der Inkubationszeit kann der SiC-Wachstumsprozeß mit RHEED bezüglich der Anstiegszeit t_a , die benötigt wird um den vollen RHEED-Intensitätshub zu erreichen, charakterisiert werden (Abb. 7.1.2 und Abb. 7.2.2). Daher soll nun untersucht werden, inwieweit sich die Wachstumsrate R , die sich proportional zum Kehrwert der Anstiegszeit verhält [Hat96], in Abhängigkeit von dem Kohlenstofffluß j_c bei verschiedenen Temperaturen verändert:

$$R \propto \frac{1}{t_a} \quad (9.2.2.1)$$

In Anlehnung an der in Abschnitt 9.2.1 verwendeten Wachstumstheorie für die Keime wird auch hier der mononukleare und polynukleare Wachstumsmechanismus betrachtet. Die Wachstumsrate lautet für den 2D-mononuklearen-Nukleationsmechanismus gemäß [Nie64]:

$$R = (6D_S r^2 / d^3) \exp\left(-\frac{\beta \gamma^2 v^{4/3}}{(kT)^2 v \ln S}\right) \quad (9.2.2.2)$$

Der mittlere Keimdurchmesser r ist auch C-ratenabhängig, wie es aus AFM-Bildern hervorgeht (Abb. 9.1.1). Aus TEM-Bildern, die das SiC-Initialwachstum erfassen, kann der mittlere Keimdurchmesser experimentell bestimmt werden. Bei einer Vergrößerung der sekundären Nukleationsrate J werden Keime gebildet, bevor sich eine komplette Lage mit einer Stufenwachstumsgeschwindigkeit v ausgebildet hat. Es kommt zu einem 2D-polynuklearen Wachstumsmechanismus. Dieser Mechanismus wird auch durch eine Zunahme der Keimgröße r , auf denen die Sekundärnukleation stattfindet, begünstigt. Wird die Fläche A_F , die von einer Wachstumslage belegt wird größer, so findet ab einer bestimmten Größe eine zusätzliche sekundäre Nukleation J auf der Terrasse statt. Dieser Übergang zwischen mononuklearem und polynuklearem Wachstum ist von [Hay73] durch eine Ungleichung quantifiziert worden:

$$A_F^{3/2} J / v \ll 1 \quad (9.2.2.3)$$

Nur für den Fall das Gleichung (9.2.2.3) erfüllt ist herrscht mononukleares Wachstum vor. In dem anderen Fall muß die Wachstumsrate über einen polynuklearen Wachstumsmechanismus gemäß [Nie69] beschrieben werden:

$$R = [K_p F(S)] \exp \left[- \frac{\beta \gamma^2 \vartheta^{4/3}}{3(kT)^2 \nu \ln S} \right] \quad (9.2.2.4)$$

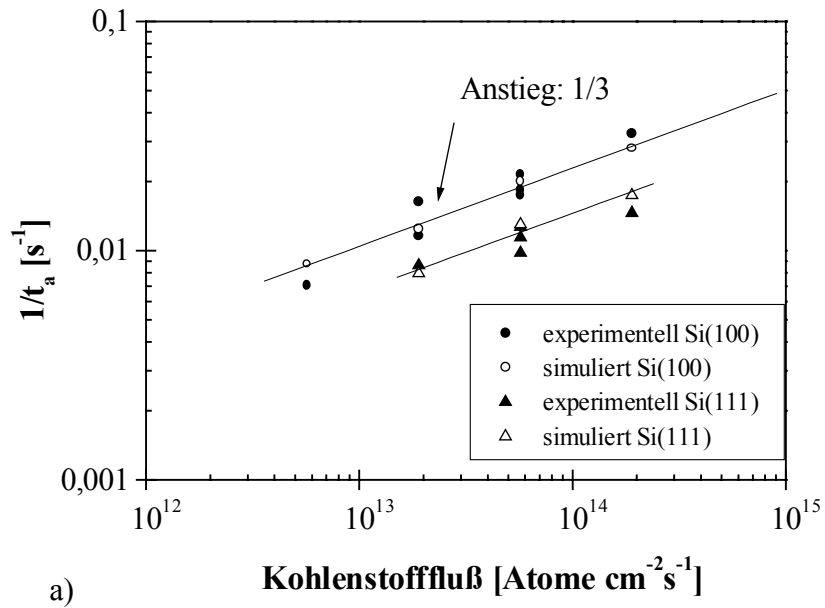
$$\text{mit: } K_p = D_s \vartheta^{1/3} c_{eq}^{2/3} \quad (9.2.2.5)$$

$$F(S) = (S - 1)^{2/3} \quad (9.2.2.6)$$

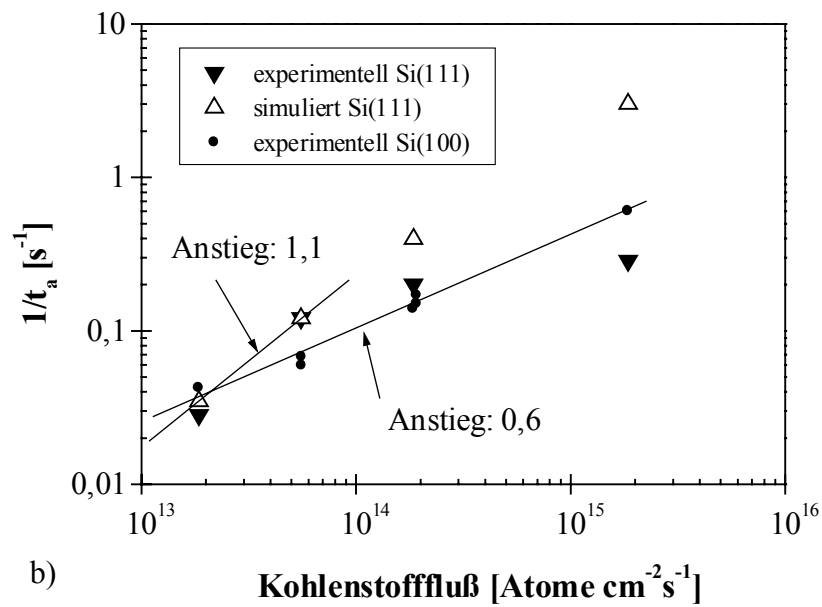
Mit den Gleichungen (9.2.2.1) – (9.2.2.6), die das favorisierte Wachstumsmodell beschreiben, wird im folgenden versucht, die experimentell ermittelten Wachstumsgeschwindigkeiten raten- und temperaturabhängig zu simulieren. Die experimentellen Wachstumsraten sind aus dem Kehrwert der RHEED-Intensitätsanstiegszeiten gemäß der Proportionalitätsbeziehung (9.2.2.1) ermittelt worden. Die Anwendung der Gleichungen (9.2.2.1) – (9.2.2.6) kann daher nur relative Aussagen zu den temperatur- und ratenabhängigen Wachstumsgeschwindigkeiten liefern. Die Wachstumsgeschwindigkeit von Rate 3, anhand der RHEED-Intensitätsanstiegszeiten, wird als Bezug gewählt und die Wachstumsgeschwindigkeiten der anderen Raten relativ zu dieser berechnet. Die Ergebnisse sind in den Abb. 9.2.2.1 a und b zusammen mit den experimentellen Wachstumsgeschwindigkeiten aufgetragen. Aus den Darstellungen ist zu entnehmen, daß die experimentellen Werte in der doppeltlogarithmischen Darstellung sich in guter Übereinstimmung mit einer Fitgerade annähern lassen. Dies weist darauf hin, daß eine Proportionalität zwischen der Wachstumsrate R , der inversen Anstiegszeit und einer Potenzfunktion des Kohlenstoffflusses j_c mit dem Exponenten p besteht:

$$R \propto \frac{1}{t_a} \propto j_c^p \quad (9.2.2.7)$$

Diese angepaßte Beschreibungsform erleichtert den Vergleich zwischen den experimentellen und simulierten Wachstumsraten. Der Exponent p erlaubt Rückschlüsse auf den Wachstumsmechanismus.



a)



b)

Abb. 9.2.2.1: Experimentelle und simulierte Wachstumsgeschwindigkeiten für Si(100) und Si(111) bei einer Prozeßtemperatur von 660°C (a) und 750°C (b).

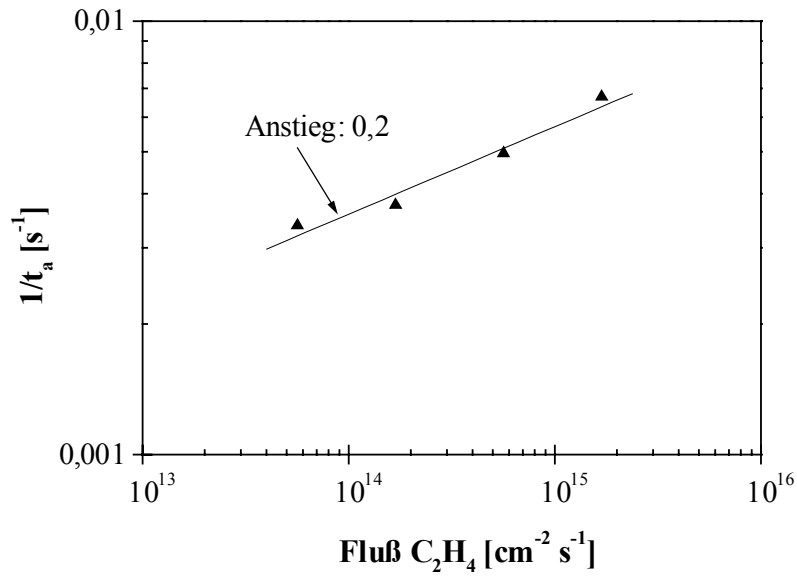


Abb. 9.2.2.2: Mittlere Wachstumsgeschwindigkeit des 3C-SiC-Wachstums als Funktion des C_2H_4 Angebotes bei 660°C für Si(111).

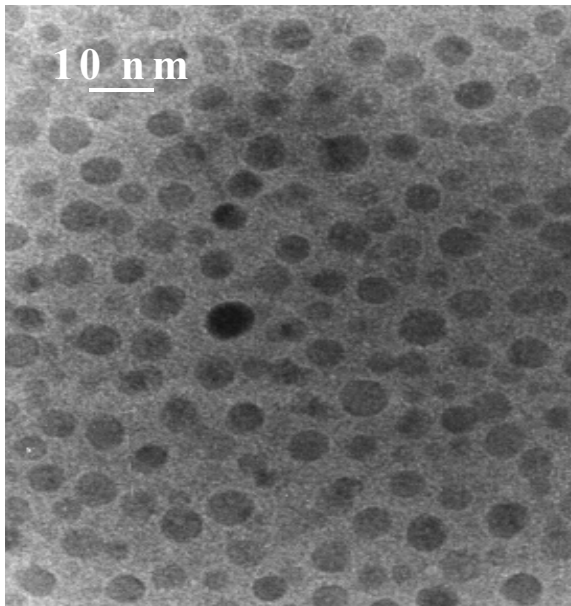


Abb. 9.2.2.3: TEM Bild einer Si(111) Probe, welche 55s einem Kohlenstofffluß von $5,5 \cdot 10^{13}$ Atomen cm⁻² s⁻¹ bei einer Substrattemperatur von 660°C ausgesetzt war, Draufsicht (Plane View TEM), [Sch00], die dunklen Kreise stellen SiC-Keime dar

Die Wachstumsrate zeigt bei der Si(111)-Oberfläche, während der Karbonisierung unter SSMBE-Bedingungen, einen Wachstumsexponenten $p=1/3$ bei 660°C in dem Ratenbereich zwischen 1 und 10 (Abb. 9.2.2.1 a). Bei der höheren Wachstumstemperatur von 750°C ergibt sich in dem Ratenbereich zwischen 1 und 3 ein Anstieg von $p=1,1$ (Abb. 9.2.2.1 b). Für den höheren Ratenbereich zwischen 10 und 100 verringert sich der Anstieg deutlich. Für die Si(100)-Oberfläche zeigt der Wachstumsexponent p unter SSMBE-Bedingungen ein ähnliches Verhalten wie bei der Si(111)-Oberfläche. Bei 660°C lautet der Wachstumsexponent auch hier $1/3$ (Abb. 9.2.2.1 a). Bei der höheren Temperatur von 750°C (Abb. 9.2.2.1 b) beträgt der Anstieg der Fitgeraden 0,6.

Der Anstieg $p=0,2$ (Abb. 9.2.2.2) aus den GSMBE – Karbonisierungsexperimenten mit Ethylen bei 660°C auf der Si(111)-Oberfläche fügt sich nicht in das unter SSMBE-Bedingungen gefundene Schema für p ein. Die Abweichung des Anstieges p für die Karbonisierung von Si(111) mit Ethylen kann aus dem Reaktionsmechanismus erklärt werden. Aus der temperaturabhängigen Betrachtung des RHEED-Intensitätsanstieges [Pla99] geht hervor, daß gemäß den Überlegungen von [Dav97] die berechnete Aktivierungsenergie nicht mit einer diffusionskontrollierten sondern mit einer reaktionskontrollierten Reaktion beschrieben werden kann. Da der Si(111)-Oberfläche ungecracktes Ethylen angeboten wurde, ist der für die SiC-Bildung notwendige Zersetzungsprozeß aufgrund der niedrigen Temperatur von 660°C der begrenzende Faktor in der Reaktionskette. Bei Temperaturen oberhalb von 1000°C zersetzen sich die Kohlenwasserstoffe genügend schnell. Damit ist dieser Teilschritt in der gesamten Reaktionskette nicht mehr begrenzend. Eine andere Möglichkeit ist die Verwendung von thermisch durch eine heiße Kathode aktivierten Kohlenwasserstoffen für die Karbonisierung. In [Hat96] wurde bei der Karbonisierung von Si(111) mit gecracktem Propan bei 750°C ebenfalls ein Wachstumsexponent von $1/3$ erreicht. Das heißt bei entsprechender Wahl der Temperaturen bzw. geeigneter Anbietung der Prozeßgase kann auch unter GSMBE-Bedingungen ein Wachstumstyp, charakterisiert durch den Wachstumsexponenten p , wie in der SSMBE eingestellt werden.

Mit TEM-Untersuchungen (Abb. 9.2.2.3) konnte für den untersuchten Temperatur- und Ratenbereich quasi 2D-SiC-Wachstum experimentell zu einem Zeitpunkt, der zeitlich innerhalb des SiC-RHEED-Intensitätsanstieges liegt, gezeigt werden. Das TEM-Bild zeigt zweidimensionale Keime in dem oberflächennahen Bereich. Aus dem TEM-Bild (Abb. 9.2.2.3) ist zudem noch eine weitere Besonderheit zu erkennen. Die Größe der einzelnen Keime ähnelt sich auffallend. Daher wird dieser Wachstumsmechanismus, der gemäß Abb. 9.2.2.1 a durch den Exponenten $p=1/3$ charakterisiert ist, auch für die Erzeugung von Präzipitaten mit einem einheitlichen Durchmesser genutzt [Shi71, Toy73]. Die beobachteten flachen Keime hatten zu diesem Zeitpunkt einen Durchmesser zwischen 5 – 8 nm. Die tempe-

ratur- und ratenabhängigen Durchmesser der Keime werden in der Wachstumsmodellierung gemäß Gleichung (9.2.2.2) benötigt.

Aus den Berechnungen in Abb. 9.2.2.1 a ist zu ersehen, daß sowohl für die Si(111)- als auch für die Si(100)-Oberfläche für 660°C mit dem 2D-mononuklearen Wachstum, gemäß Gleichung (9.2.2.2), eine gute Übereinstimmung zu dem Anstieg $p=1/3$ der experimentellen Meßpunkte zu erzielen ist.

Der für die Si(111)-Oberfläche bei 750°C mit $p=1,1$, gemäß der polynuklearen 2D-Wachstumsbeschreibung (Gleichung (9.2.2.4)), errechnete Exponent entspricht dem experimentellen Anstiegsverhalten der Wachstumsrate für Rate 1 und Rate 3 recht gut (Abb. 9.2.2.1 b). In dem Ratenbereich zwischen 10 und 100 konnte zwischen den experimentellen Werten und den simulierten Werten gemäß dem 2D-polynuklearen Wachstumsmechanismus keine Übereinstimmung bezüglich des Anstiegsverhaltens der Wachstumsgeschwindigkeit erzielt werden. Der Anstieg der simulierten Werte liegt bei $p=1$ wohingegen sich die experimentellen Werte dem Anstieg von $p=1/3$ annähern. Eine Erklärung für die Verringerung des experimentellen Anstiegsverhaltens läßt sich mit dem zugrundegelegten Wachstumsmodell angeben. Der mittlere Keimdurchmesser verringert sich gemäß den Darstellungen in Abschnitt 9.1 signifikant mit Zunahme der Kohlenstoffrate. Dies hat Auswirkungen auf den Wachstumsmechanismus. Der Übergang von dem 2D-mononuklearen Wachstumsmechanismus zu dem 2D-polynuklearen Wachstumsmechanismus wird neben der Temperatur auch von dem Keimradius, der mit der dritten Potenz gemäß der Ungleichung (9.2.2.3) berücksichtigt wird, bestimmt. Eine Verringerung des Keimdurchmessers und eine Erhöhung der Stufenwachstumsgeschwindigkeit begünstigen einen 2D-mononuklearen Wachstumsmechanismus gegenüber dem 2D-polynuklearen Wachstumsmechanismus.

Die Si(100)-Oberfläche zeigt bei 750°C dahingegen einen relativ geringen Anstieg von $p=0,6$. Die Durchmesser der SiC-Keime auf der Si(100)-Oberfläche zeigen bei sonst gleichen Prozeßbedingungen einen um rund 1,4 kleineren Radius gegenüber der Si(111)-Oberfläche, damit ist gemäß der Ungleichung (9.2.2.3) der polynukleare 2D-Nukleationsmechanismus zu höheren Temperaturen verschoben. Der Anstieg von $p=0,6$ stellt damit auch bei 750°C noch eine Kombination der beiden Nukleationsmechanismen dar. Die Übersättigung S beinhaltet die Temperaturabhängigkeit der Gleichgewichtslöslichkeit des Kohlenstoffs in den oberen Si-Lagen. Die beste Übereinstimmung zwischen experimentellen und simulierten Werten konnte mit einer Aktivierungsenergie von 0,8 eV für die Gleichgewichtslöslichkeit des Kohlenstoffs erzielt werden.

In der Literatur [Hat96] ist eine Beschreibung für den beobachteten Wachstumsexponenten von $1/3$ beim quasi 2D-SiC Wachstum zu finden. Die Wachstumsrate R wurde hier in Abhängigkeit von der Nukleationsrate J , der Stufenwachstumsgeschwindigkeit v und dem Netzebenenabstand d wie folgt beschrieben:

$$R = d \left(\frac{\pi}{3} \right)^{\frac{1}{3}} v^{\frac{2}{3}} J^{\frac{1}{3}} \quad (9.2.2.8)$$

Von dieser Wachstumsbeschreibung wurde eine Näherungsbeziehung abgeleitet, die von der Voraussetzung ausgeht, daß die Stufenwachstumsgeschwindigkeit nur schwach im Vergleich zur Nukleationsrate von dem Angebot der Propanmoleküle abhängt. Zu dieser Näherung finden sich in der Literatur unterschiedliche Betrachtungen. In [Söh92] wird die Stufenwachstumsgeschwindigkeit als proportional zum Angebot an Teilchen in der Umgebung der Wachstumsfront angenommen und in [Eer93] wird davon ausgegangen, daß sich diese Geschwindigkeit logarithmisch zum Teilchenangebot verhält. Diese diskussionswürdige Vereinfachung der Wachstumsgeschwindigkeit ist in der Veröffentlichung von [Hat96] nicht kommentiert worden. Als weitere Näherung, die ebenfalls nicht begründet wurde, ist die Proportionalität zwischen der Nukleationsrate J und dem Molekülangebot bzw. dem Teilchenstrom j_c zu nennen. In [Söh 92] findet sich der Hinweis, daß für sehr starke Übersättigungen bei einer angenommenen Reaktion 1. Ordnung die Nukleationsrate sich proportional zur Übersättigung bzw. Rate verhält. Damit lautet die Proportionalität zwischen der Wachstumsrate R und dem Teilchenfluß j_c :

$$R \propto j_c^{\frac{1}{3}} \quad (9.2.2.9)$$

Mit diesen Näherungen wurde in [Hat96] der Exponent von $1/3$ gemäß Gleichung (9.2.2.9) erklärt. Es wurde als Bestätigung des mit REM ermittelten quasi-2D-Wachstums interpretiert. Diese Wachstumsbeschreibung kann die beobachtete temperaturabhängige Veränderung des Wachstumsexponenten p nicht erklären.

Die gewonnen Gesetzmäßigkeiten der Nukleation und des Wachstums von SiC-Precipitaten in der Silizium–Kohlenstoff–Legierungsphase für die Si(111)- und Si(100)-Oberfläche können genutzt werden, um die SiC-Keimgröße und die Morphologie einzustellen. Zu diesem Zweck wurde der Keimbildungsprozeß nach dem halben RHEED-Intensitätsanstieg, des (111)-SiC- bzw. des (202)-SiC-Beugungspunktes für die Si(111)- bzw. der Si(100)-Oberfläche, abgebrochen. Die Wachstumsunterbrechung zeigt ungefähr gleiche SiC-Keimgrößen, bei einem Abstand zwischen den Keimen der dem Durchmesser der Keime entspricht. Die so ermittelten Keimdurchmesser sind in Abb. 9.2.2.4 wiedergegeben.

Deutlich ist der Übergang zwischen der vollständigen zu der unvollständigen Kondensation zu erkennen, der bei Si(111) bei rund 750°C und bei Si(100) bei 800°C zu beobachten ist. Der Wachstumstyp und damit die Morphologie ändern sich signifikant. Im Bereich der vollständigen Kondensation ist während des SiC-Initialwachstums 2D-SiC-Wachstum und bei der unvollständigen Kondensation 3D-SiC-Wachstum zu beobachten. Die Rauigkeit, die mit der unvollständigen Kondensation einhergeht, ist mit einem AFM-Bild (Abb. 9.2.2.5), welches 55s nach dem Prozeßstart während der C-Rate 3 aufgenommen wurde, dokumentiert.

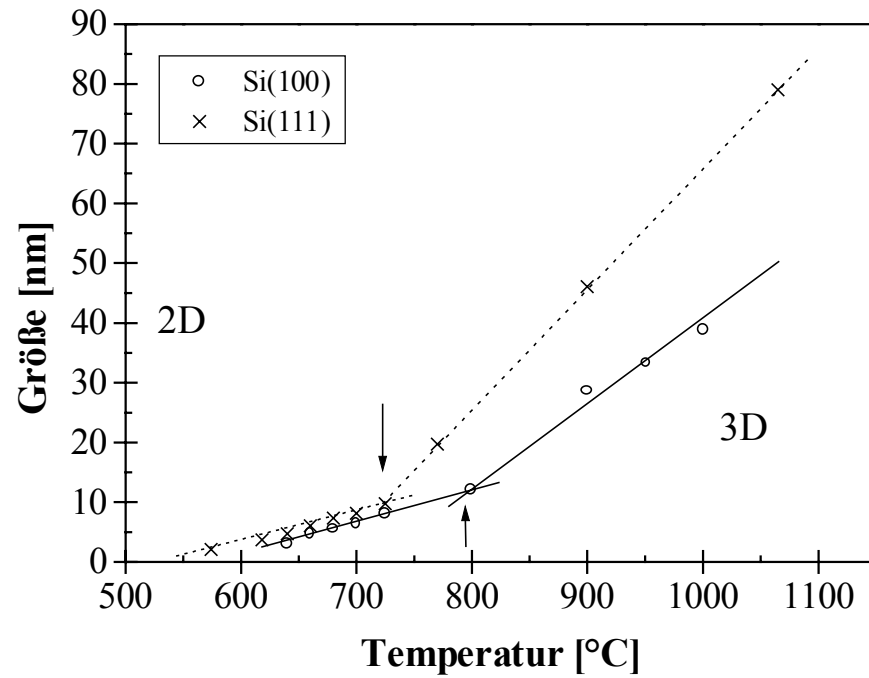


Abb. 9.2.2.4: Keimdurchmesser in Abhängigkeit von der Temperatur bei einem C-Fluß von $5,5 \times 10^{13}$ Atome $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$. Pfeile markieren den Übergang von der 2D- zur 3D-Keimbildung

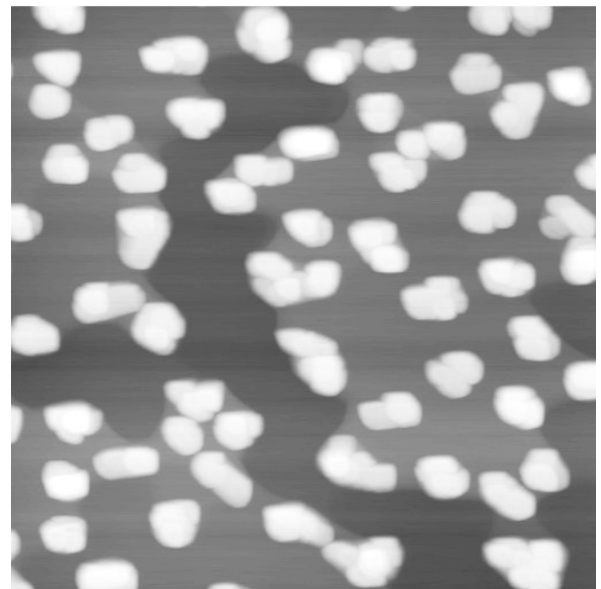
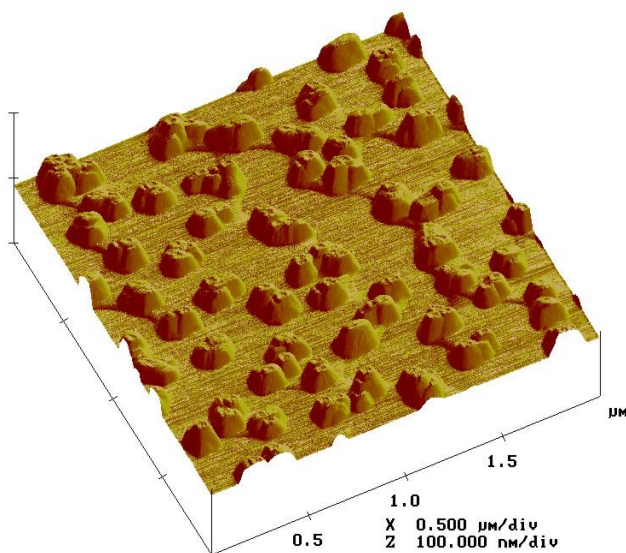


Abb. 9.2.2.5: AFM-Bild ($2 \times 2 \mu\text{m}$) einer karbonisierten Si(111) – Oberfläche (on axis $0,2^\circ$), C-Rate 3, 55 s nach Prozeßstart, Prozeßtemperatur 1065°C , Durchmesser der Keime 170-250 nm, Höhe der Keime 20-25 nm, Keimdichte $15 \mu\text{m}^{-2}$ [Cim01]

9.3 Zusammenfassung

- (1) Aus der Keimdichte während der Karbonisierung wurde die kritische Keimgröße für das 3C-SiC-Wachstum auf der Si-Oberfläche bestimmt. Auf der Si(111)-Oberfläche beträgt die kritische Keimgröße $i=6$ und auf der Si(100)-Oberfläche $i=1$. Zusammen mit anderen Bestimmungen der kritischen Keimgrößen aus der Literatur kann der Schluß gezogen werden, daß der Wert von i wesentlich durch die Kristallstruktur der epitaktisch aufwachsenden Schicht bestimmt wird.
- (2) Die Art der sekundären Nukleationsmechanismen von SiC auf Si(100) und Si(111) wurde durch RHEED-Untersuchungen raten- und temperaturabhängig bestimmt. Sowohl mit der Auswertung der Inkubations- als auch der Anstiegszeit in dem SiC-RHEED-Intensitätsverlauf kann zwischen Mono- bzw. Polynukleation unterschieden werden. Für das SiC-Initialwachstum, bei einer Prozeßtemperatur von 660°C, konnte für Keimdurchmesser von weniger als 2 nm Mononukleation auf der Si(111)- und der Si(100)-Oberfläche nachgewiesen werden. Auf der RHEED-Intensitätsrampe, d.h. bei sich vergrößernden Keimdurchmessern ergibt sich je nach C-Rate und Temperatur neben der Mononukleation noch die Polynukleation. Auf der Si(111)-Oberfläche konnte in dem Ratenbereich (Rate 0,3....100) genauso wie auf der Si(100)-Oberfläche für den Ratenbereich zwischen (Rate 0,3....10) 2D-mononukleares Wachstum für 660°C nachgewiesen werden. Bei einer Erhöhung der Karbonisierungstemperaturen wurde auf beiden Si-Oberflächen zumindest ein partielles Auftreten von polynuklearem Wachstum festgestellt. Auf der Si(111)-Oberfläche ergab sich für 725°C in dem Ratenbereich (Rate 1....3) polynukleares Wachstum und oberhalb von Rate 3 ein mononukleares Wachstum. Auf der Si(100)-Oberfläche ergab sich in dem Ratenbereich (Rate 1....100) ein kombiniertes Auftreten von 2D-mononuklearem und polynuklearem Wachstum für 750°C.
- (3) Die Ergebnisse konnten zu einem Modell (Abb. 9.3.1) zusammengefaßt werden, welches durch TEM-Untersuchungen bestätigt wurde.
- (4) Der Nukleationsmechanismus beeinflusst wesentlich die Größe, Verteilung und Morphologie, was in der Nanotechnologie für eine Selbstskalierung ausgenutzt werden könnte. Für den mononuklearen Nukleationsmechanismus wurde ein einheitlicher Keimdurchmesser während des SiC-Initialwachstums beobachtet. Der mononukleare Nukleationsmechanismus liefert eine relativ glatte Oberfläche sowohl der einzelnen Keime als auch der Si-Oberfläche.

Initial Wachstumsmodell für SiC auf Si

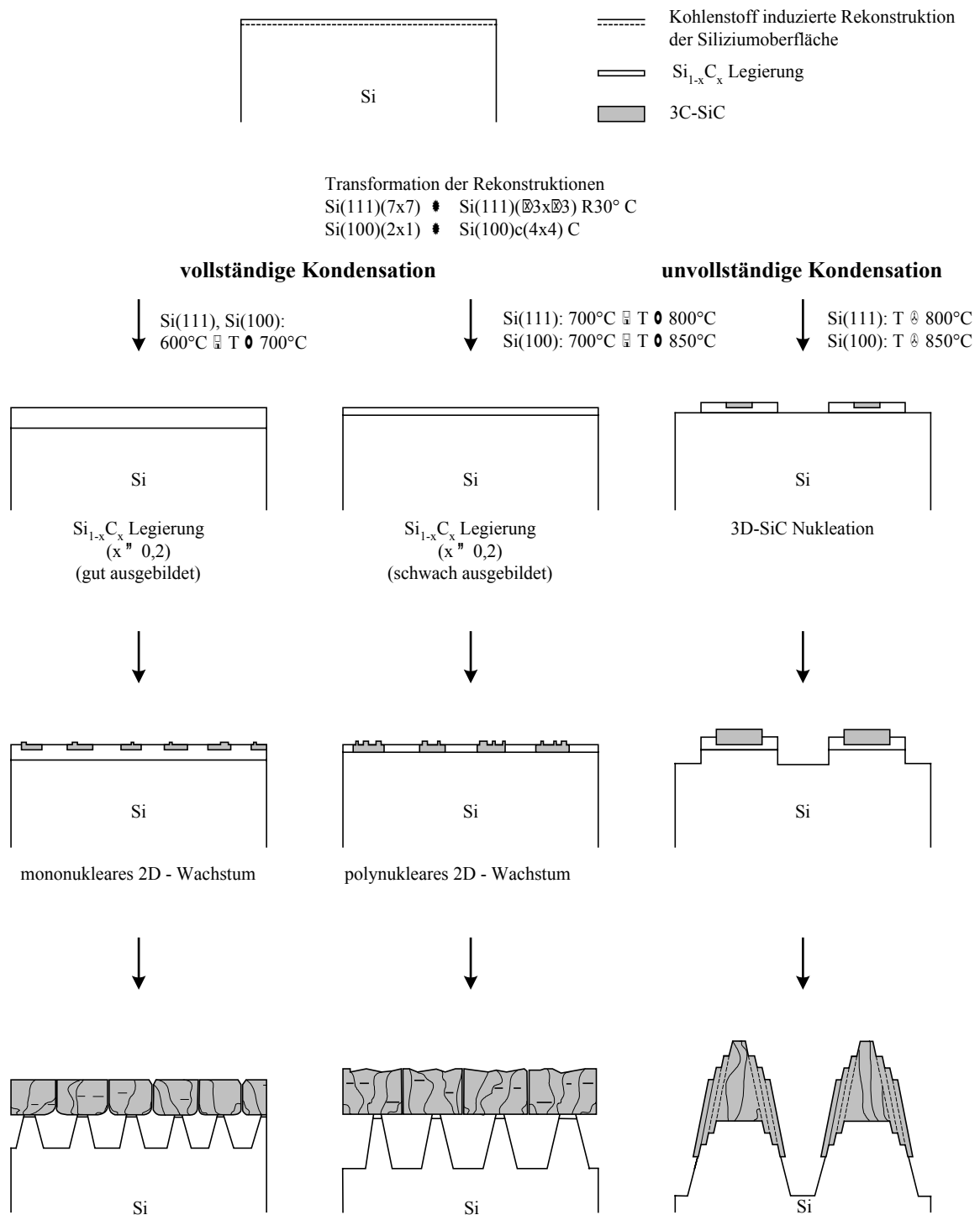


Abb. 9.3.1: Erläuterung des SiC-Wachstums auf Si und der Morphologie der SiC-Schichten.

10 Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden erstmalig umfassend die ersten Stadien der Wechselwirkung des Kohlenstoffs mit Si(100) und Si(111) mit einem einheitlichen Instrumentarium untersucht. Mit den Ergebnissen der durchgeführten Untersuchungen konnte gezeigt werden, daß der Wechselwirkungsprozeß in folgenden Etappen abläuft:

$$\begin{aligned} \text{Adsorption} &\rightarrow \frac{\text{Rekonstruktionswechsel}}{\text{Si}_{1-x}\text{C}_x - \text{Mischkristallbildung}} \rightarrow \text{SiC Keimbildung im Si}_{1-x}\text{C}_x - \text{Mischkristall} \rightarrow \\ &\rightarrow \text{Keimwachstum und Koaleszenz} \rightarrow \frac{\text{Schichtwachstum}}{\text{Löcherbildung}} \end{aligned}$$

Die während der Interaktion mit Kohlenstoff auf den beiden Si-Oberflächen auftretenden Rekonstruktionen wurden systematisch untersucht. In Phasendiagrammen sind die Existenzgebiete der Oberflächenrekonstruktionen zusammengefaßt worden. Der Oberflächendiffusionskoeffizient des Kohlenstoffs konnte erstmalig während der Ausbildung der Kohlenstoff induzierten Si(111)($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$)R30°-C- und der Si(100) c(4x4)-C-Rekonstruktion experimentell ermittelt werden.

Mit einem detaillierten Modell der Keimbildung mit klassischen Ansätzen, konnte sowohl die Größe des kritischen Keimes für die SiC-Bildung auf den beiden Si-Oberflächen als auch die Art des weiteren Wachstums der SiC-Keime für den Parameterraum beschrieben werden. Es konnte hier zwischen dem mononuklearen und dem polynuklearen Wachstum unterschieden werden. In Abhängigkeit von dem Wachstumstyp ergaben sich Zusammenhänge zur Keimgröße, zur Keimdichte und zur Morphologie der Keime. Desweiteren konnte der Existenzbereich der zweidimensionalen und der dreidimensionalen Keimbildung für den Bereich niedriger Temperaturen bestimmt werden. Die Kenntnis der Keimbildung ist eine wesentliche technologische Voraussetzung für folgende Anwendungen:

- 1) Die zweidimensionale SiC-Keimbildung ist prinzipiell für die Herstellung von Antidot-Strukturen geeignet, die mit lithographischen Methoden nur schwer zu erzeugen sind [Sch00].
- 2) Für das dreidimensionale SiC-Wachstum liegt in der Nanotechnologie ebenfalls eine mögliche Verwendung vor. Mit 3D-SiC-Keimen könnten Nanokathoden hergestellt werden[Cim01].

Die Beherrschung der Initialstadien bei der Wechselwirkung von Kohlenstoff ist außerdem notwendig für die Ausbildung defektarmer Grenzflächen und einkristallinem Wachs-

tum. Mit einem optimierten SiC-Initialwachstum auf Si lassen sich SiC-Schichten herstellen, die als Pseudosubstrat für eine GaN-Abscheidung geeignet sind [As00]. Damit ist die Basis geschaffen für die Integration von Breitbandhalbleitern für die Optoelektronik auf Si. Für spezielle Anwendungen in der Sensorik [Ruh96] wird die SiC-Schicht direkt als aktive Schicht benutzt. Der große Vorteil bei diesen Bauelementen ist die mögliche Integration in die Si-Elektronik.

Für die Auswertung und Simulation von Beugungsbildern, die auf Elektronenbeugung basieren, muß das mittlere innere Potential (MIP) bekannt sein. Das MIP für Silizium und für 6H-SiC wurde daher experimentell bestimmt und mit theoretischen Werten verglichen.

Neben der experimentellen Auswertung von RHEED-Bildern wurde durch entsprechende Simulationen eine Strukturaufklärung durchgeführt. Die Struktur der kohlenstoffinduzierten Rekonstruktionen auf Silizium ist derzeit noch nicht bekannt. Es wurden daher unterschiedliche Strukturmodelle mit RHEED verifiziert. Bei der Si(111) ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$)R30° - C-Rekonstruktion lieferte die S₅ - Positionierung des Kohlenstoffs die beste Übereinstimmung zu dem experimentellen RHEED-Bild. Für die Si(100) c(4x4)-C-Rekonstruktion ist mit Kohlenstoff in exponierter Lage, in Form von C-Dimeren, eine gute Übereinstimmung zwischen Experiment und Simulation erreicht worden.

Für die kontrollierte Abscheidung von SiC-Schichten in der Nanotechnologie ist die Kenntnis des Einflußbereiches der Polarität auf die RHEED-Untersuchungen notwendig. Mit RHEED-Simulationen konnte der Zusammenhang zwischen der Eindringtiefe des Elektronenstrahles und der Bestimmbarkeit der Polarität mittels RHEED-Bild aufgezeigt werden.

Die unterschiedlichen elektronischen Strukturen der einzelnen SiC-Polytype ermöglichen prinzipiell die Schaffung von chemisch homogenen Hetero- und niedrigdimensionalen Strukturen [Fis00]. Dies könnte für die Entwicklung von neuartigen Quantenbauelementen, unter Ausnutzung von unterschiedlich großen Bandabständen, genutzt werden. Dies setzt die *in situ* Steuerung des Wachstums und die Detektierbarkeit der SiC-Polytype voraus. Zu diesem Zweck wurden die RHEED-Beugungsbilder der SiC-Polytype sowohl für den Fall der dreidimensionalen- als auch der zweidimensionalen Beugung untersucht. Bei der zweidimensionalen Beugung konnte erstmalig die Möglichkeit der Detektion der hexagonalen Polytype 4H- und 6H-SiC mittels Simulation nachgewiesen werden.

Literaturverzeichnis

- [Ach92] Acheson, E. G.: *Brit. Pa.* 17 (1892) 911.
- [Aga00] Agarwal, A.; Ryu, S.-H.; Singh, R.; Kordina, O.; Palmour, J.W.: *Mater. Sci. Forum* 338-342 (2000) 1387.
- [Akt96] Aktas, O.; Fan, Z.F.; Mohammad, S.N.; Botchkarev, A.E.; Morkoc, H.: *Appl. Phys. Lett.* 69 (1996) 3872.
- [And96] Andrieu, S.; Fréchar, P.: *Surf. Sci.* 360 (1996) 289.
- [Ani92] Anikin, M. M.; Andreev, A. N.; Pyatko, S. N.; Savkina, N. S.; Strelchuk, A. M.; Syrkin, A. L. and Chelnokov, V. E.: *Sensors and Actuators A*, 33 (1992) 91.
- [As00] As, D.J.; Frey, T.; Schikora, D.; Lischka, K.; Cimalla, V.; Pezoldt, J.; Goldhahn, R.; Kaiser, Gephard, W.: *Appl. Phys. Lett.* 78 (2000) 1686.
- [Att99] Attenberger, W.; Lindner, J.K.N.; Cimalla, V.; Pezoldt, J.: *Mater. Sci. Eng.* B61-62 (1999) 544.
- [Bal70] Balog, M.; Reisman, A.; Berkenblit, M.: *J. Electr. Mater.* 9 (1980) 669.
- [Bea71] Bean, A. R. and Newman, R. C.: *J. Phys. Chem. Solids* 32 (1971) 1211.
- [Bee35] Beeching, B.: *Phil. Mag.* 7, 20 (1935) 841/55, 849.
- [Böl88] Bölger, B.; Larsen, P. K. and Meyer Ehmsen, G.: RHEED and disordered surfaces, In Larsen, P. K. and Dobson, P. J. editors, *Reflection High-Energy Electron Diffraction and Reflection Electron Imaging of Surfaces* Nato ASI Series B, Volume 188, Plenum Press New York, London, (1988) 201-209.
- [Bra96] Braun, W.: *Reflection High - Energy Electron Diffraction Studies of Semiconductor Interfaces During Molecular Beam Epitaxy Growth Dissertation*, Humbolt-Universität zu Berlin 1996
- [Bra98] Brandt O. in Gil, B.: *Group III Nitride Semiconductor Compounds*, Carendon Press, Oxford, 1998, pp.417-436.
- [Bro93] Brown, D. M.; Downey, E.T.; Ghezzi, M.; Kretchmer, J.W.; Saia, R.J.; Liu, Y.S.; Edmond, J.A; Gati, G.; Pimply, J.M. and Schneider, W.E.: *IEEE Trans. Electron Devices.* 40 (1993) 325
- [Bru92] Brunner, K.; Eberl, K.; Winter, W.: *Phys. Rev. Lett.* 76 (1996) 303.
- [Car00] Carter, G.E.; Casady, J.B.; Bonds, J.; Okhuysen, M.E.; Scofield, J.D., Saddow, S.E.: *Mater. Sci. Forum* 338-342 (2000) 1149.
- [Cha69] Charig, J.M.; Skinner, D.K.; *Surf. Sci.* 15 (1969) 277.
- [Che92] Chen, P.J.; Colianni, M.L.; Yates, J.T., Jr.: *J. Appl. Phys.* 72 (1992) 3155.
- [Che95] Chen, D.; Sarid, D.: *Surf. Sci* 344 (1995) 23.
- [Cho90] Choyoke, W. J.: In *The Physics and Chemistry of Carbides, Nitrides and Borides*, Vol. 185 of NATO Advanced Study Institute Series, ed. by R. Freer (Kluwer, Dordrecht) (1990) pp.563.
- [Chu86] Churcher, N.; Heine, V.: *J. Phys. C: Solid State Phys.* 19 (1986) 4413.
- [Cim01] persönliche Mitteilung von V. Cimalla, TU-Ilmenau (2001).

- [Cim98a] Cimalla, V.: Karbonisieren von Siliziumsubstraten. Dissertation, TU Ilmenau 1998.
- [Cim98b] Cimalla, V.; Stauden, Th.; Ecke, G.; Scharmann, F.; Eichhorn, G.; Sloboshanin, S.; Schaefer, J.A.; Pezoldt, J.: Appl. Phys. Lett. 73 (1998) 3542
- [Dav97] Davis, R. F.; Kern, R. S.; Järrendahl, K.: Phys. Stat. Sol. (B), 202 (1997) 379.
- [Dev98] Devrajan, J.; Steckl, A.J.; Tran, C.A.; Stall, R.A.: Mater. Sci. Forum 264-268 (1998) 1149.
- [Dya00] Dyakonova, N.V.; Ivanov, P.A.; Kozlov, V.A.; Levinshtein, M.E.; Palmour, J.W.; Rumyantsev, S.L and Singh, R.: Mater. Sci. Forum 338-342 (2000) 1319
- [Doy68] Doyle, P.A. and Turner, P. S.: Acta Cryst. A24 (1968) 390.
- [Dur81] Durupt, P.; Roger, J. A.; Pivot, J.: Thin solid films 8 (1981) L 191.
- [Eer93] Van der Eerden, J.P.: Crystal Growth Mechanisms, Chapter 6 in Handbook of Crystal Growth 1, Fundamentals Part A: Thermodynamics and Kinetics, Hurle, D. T. J.: North-Holland, Amsterdam-London-New York-Tokyo, 1993.
- [Ebe92] Eberl, K.; Iyer, S. S.; Zollner, S.; Tsang, J. C.; Le Goues, F. K.: Appl. Phys. Lett. 60 (1992) 3033.
- [Fan92] Fang, Y. K.; Hwang, S.-B.; Chen, K.-H.; Liu, C.-R.; Tsau, M.-J. and Kuo, L.-C.: IEEE Transactions on Electron Dev. 39 (1992) 292-296.
- [Fis95] Fissel, A.; Kaiser, U.; Pfennighaus, K.; Ducke, E.; Schröter, B. and Richter, W.: Inst. Phys. Conf. Ser. 142 (1995) 121.
- [Fis95b] Fissel, A.; Schröter, B.; and Richter, W.: Appl. Phys. Lett. 66 (1995) 3182.
- [Fis97] Fissel, A.; Pfennighaus, K.; Richter, W.: Appl. Phys. Lett. 71 (1997) 2981.
- [Fis99] Fissel, A.; Kaiser, U.; Kräußlich, J.; Pfennighaus, K.; Schröter, B.; Schulz, J.; Richter, W.: Mater. Sci. Eng. B.61-62 (1999) 139.
- [Fis00] Fissel, A.: Mater. Sci. Forum 338-342 (2000) 209.
- [Fis00b] Fissel, A.; Kaiser, U.; Schröter, B.; Kräußlich, J.; Hohent, H.; Richter, W.: Mater. Sci. Forum 338-342 (2000) 205.
- [Gan91] Ganz, E.; Hwang, E.S.; Xiong, F.; Theiss, S.K.; Golovchenko, J.; Surf. Sci. 257 (1991) 259.
- [Gau71] Gaukler, K. H.; Schwarzer, R.: Optik 33 (1971) 215.
- [Gif95] Giftge, C.: Reflexionselektronenbeugung an II-VI Halbleitern, Dissertation; TU Braunschweig, 1995.
- [Gro68] v. Grote, K. H.: Optik 28 (1968/69) 374.
- [Gue98] Guedj, C.; Dashiell, M. W.; Kulik, L.; Kolodzey, J.: J. Appl. Phys. 84 (1998) 4631.
- [Gut96] Gutheit, T.: Si_{1-x}C_x-Schichten zur Verbesserung der Heteroepitaxie von Diamant auf Si Dissertation ,Technische Universität München (Walter Schottky Institut), 1996.
- [Har95] Harris, G. L.: Properties of Silicon Carbide, INSPEC, Short Run Press Ltd. Exeter, United Kingdom, 1995.
- [Hat96] Hatayama, T.; Fuyuki T. and Matsunami, H.: Jpn. J. Appl. Phys. 35 (1996) 5255.
- [Hay73] Hayashi, M. J.: Phys. Soc. Jap. 35 (1973) 614.
- [Hen94] Henzler, M.; Göpel W.: Oberflächenphysik des Festkörpers; B. G. Teubner, Stuttgart 1994.
- [Hen95] Henke, S.; Rauschenbach, B.: J. Appl. Phys. Lett 68 (1995) 2070.

- [Hen96] Henke, S.; Rauschenbach, B.; Stritzker, B.: Mater. Sci. Eng. B 36 (1996) 291.
- [Hib00] Hibino, H.; Kawamura, T.; Ogino, T.: Thin Solid Films 369 (2000) 5.
- [Hir92] Hirai, M.; Iwami, M.; Kusaka, M.; Fukumoto, K.; Nakamura, H.; Watabe, H.: in: Amorphous and Crystalline Silicon Carbide III (Hrsg.: Harris, G. L.; Spencer, M. G.; Yang, C. Y.) Springer, Berlin, Heidelberg (1992) 251-256.
- [Hol85] Hollemann, A.F.; Wiberg, N.: Lehrbuch der Anorganischen Chemie, Walter de Gruyter, Berlin, 1985, 811.
- [Hor98] Yoshimi, H.: Jpn. J. Appl. Phys. 37 (1998) L 164.
- [Hu96] Hu, C.-W.; Suto, S.; Wawro, A.; Nishina, Y.: Appl. Phys. Lett. 68 (1996) 1253.
- [Ich83] Ichimiya, A.: Japan. J. Appl. Phys. 22 (1983) 176.
- [Ick83] Ickert, L.; Schneider, H. G.: Wachstum einkristalliner Schichten, VEB Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig, (1983) 235.
- [Ide92] Ide, T. and Mizutani, T.: Physical Review B, 45 (1992) 1447.
- [Ike98] Ikeda, M.; Maruoka, T.; Nagashima, N.: Surf. Sci. 416 (1998) 240.
- [Ino87] Shozo Inoue, Kumayasu, Masataka Umeno and Hideaki Kawabe; Thin Solid Films, 151 (1987) 403.
- [Jay96] Jayatirtha, H. N.; Spencer, M. G.: MRS Symp. Proc. 410 (1996) 329.
- [Joo89] Joos, G.: Lehrbuch der theoretischen Physik, Aula Verlag Wiesbaden 1989.
- [Kal94] Kalnin, A.A.; Neubert, F.; Pezoldt J.: Diamond and Related Materials 3 (1994) 346.
- [Kar93] Karl, H.: Zeitaufgelöste in-situ RHEED-Messungen während der Laserablation von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, SrTiO_3 und $(\text{Y}_2\text{O}_3)\text{ZrO}_2$ und Charakterisierung der Schichten mit dem Raster-Tunnel-Mikroskop, RBS und elektrischen Methoden; Dissertation; Universität Augsburg, 1993.
- [Kat88] Kato, K.; Ide, T.; Nishimori, T. and Ichinokawa, T.: Surf. Sci. 207 (1988) 177.
- [Kim93] Kimoto, T.; Nishino, H.; Yoo, W. S. and Matsunami, H.: J. Appl. Phys. 73 (1993) 726.
- [Kim97] Kim, M.; Osten, H.J.: Appl. Phys. Lett. 70 (1997) 2702.
- [Kit96] Kittel, Ch.: Einführung in die Festkörperphysik; 11. Auflage, R. Oldenbourg Verlag München Wien, 1996.
- [Koi00] Koitzsch, C.; Scharmann, F.; Maslarski, P.; Conrad, D.; Scheerschmidt, K.: Pezoldt, J: Appl.surf.Sci.(2001) in print.
- [Kor90] Korte, U.; Meyer, G.: Ehmsen Surf. Sci. 232 (1990) 367.
- [Kor98] Kordina, O.; Henry, A.; Janzén, E. and Carter, C. H. Jr.: Materials Science Forum 264-268 (1998) 97.
- [Kos98] Kosugi, R.; Sumitani, S.; Abukawa, T.; Takakuwa, Y.; Suzuki, S.; Sato, S.; Kono, S.: Surf. Sci. 412/413 (1998) 125.
- [Kos99] Kosugi, R.; Takakuwa, Y., Kono, S.: Research Institute for Scientific Measurements, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan (1999) 3939.
- [Kub90] Kubby, J. A.; Wang, Y.R. and Greene, W. J.: Phys. Rev. Lett. 65 (1990) 2165.

- [Kuc88] Kuchling, H.: Taschenbuch der Physik, Aufl. 10, Harri Deutsch (1988).
- [Kus97] Kusunoki, I.; Takagaki, T.; Ishidzuka, S.; Igari, Y.; Takaoka, T.: Surf. Sci. 380 (1997) 131.
- [Lag93] Lagally M. G., Savage D. E. Materials Research Society Bulletin 24 – 31 (1993)
- [Lan82] Landolt-Börnstein: New Series Bd. III, 17, Berlin 1982.
- [Lan92] Landau, L.D.; Lifschitz, E. M.: Lehrbuch der Theoretischen Physik, Band 2, Akademie Verlag GmbH, Berlin 1992, S. 243.
- [Lau 81] Laukhe, Y.; Tairov, Y. M.; Tsvetkov, V. F.; Shechepanski, F.: Neorgan. Mat. 17 (1981) 177.
- [Leb00] Lebedev, A.A.; Savkina, N.S.; Ivanov, A.M.; Stokan, N.B.; Davydov, D.V.: Mater. Sci. Forum 338-342 (2000) 1447.
- [Lei99] Leifeld, O.; Grützmacher, G.; Müller, B.; Kern, K.; Kaxiras, E. and Kelires, P. C.: Phys.Rev.Lett, 82 (1999) 972.
- [Lel55] Lely, J. A.: Ber. Dt. Keram. Ges. 32 (1955) 229.
- [Li95] Li, J. P. J.: J.Electrochem. Soc. 142, 2 (1995) 634.
- [Lif94] Lifshits, V.G.; Saranin A. A. and Zotov A.V.: Surface Phases on Silicon; John Wiley & Sons, (1994).
- [Liu00] Liu, C.-L.; Borucki, L.J.; Merchant, T.; Stoker, M. and Korkin, A.: Appl. Phys. Lett., 76 (2000) 885.
- [Lüt97] Lüth, H.: Surfaces and Interfaces of Solid Materials, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York 1997.
- [Lüt98] Butz, R.; H.Lüth; Surf. Sci. 411 (1998) 61.
- [Ma95] Ma, Y.; Lordi, S.; Eades, J. A.: Ultramicroscopy 60 (1995)137.
- [Ma94] Ma, Y.; Lordi, S.; Eades, J. A.: Surf. Sci. 313 (1994) 317.
- [Mat81] Matsunami, H.; Nishino, S.; Ono, H.: IEEE Trans. Electron. Devices 28 (1981) 1235.
- [Mea89] Meade, R.D. and Vanderbilt, D.: Phys. Rev. B46 (1989) 3905.
- [Miy94] Miyamoto, Y.: Phys. Rev. B 49 (1994) 1947.
- [Mik98] Miki, K.; Sakamoto, K.; Sakamoto, T.; Surf. Sci. 406 (1998) 312.
- [Mor88] Morehead, F. F.: Mater, Res. Soc. Symp. Proc. 104 (1988) 99.
- [Mül94] Müller, B.: Profilanalyse bei der Reflexionselektronenbeugung (RHEED): elastische und inelastische Streuung, Fortschr.-Ber. VDI Reihe 9 Nr.197. Düsseldorf: VDI-Verlag 1994.
- [Nak97] Nakamura, S.; Senoh, M.; Nagahama, S.; Iwasa, N.; Yamada, T.; Matsushita, T.; Sugimoto, Y. and Kiyoku, H.: Appl. Phys. Lett. 70 (1997) 1417.
- [Neu83] Neubert, F.; Pezoldt J.: Isw. LETI 322 (1983) 54.
- [New61] Newman R.C. and Wakefield J. J.: Phys. Chem. Solids 19 (1961) 230.
- [Nie64] Nielsen, A.E.: Kinetics of Precipitation, Pergamon, Oxford, 1964.
- [Nie69] Nielsen, A.E.; Krist. Technik 4 (1969) 17.
- [Nob00] Noblanc, O.; Arnodo, C.; Dua, C.; Chartier, E.; Brylinski, C.: Mater. Sci. Forum 338-342 (2000) 1247.

- [Nog88] Nogami, J.; Park, Sang-il; Quate, C.F.; J.Vac. Sci. Technol. A7 (1988) 1919
- [Nor86] Northrup, J. E.: Phys. Rev. Lett. 57 (1986) 154.
- [Nor95] Northrup J.E. and Neugebauer J.: Theory of the adatom-induced reconstruction of the SiC(0001) surface Physical Review B52 (1995) R17001
- [Ost97] Osten, H.J.; Bugiel, E. and Zaumseil, P.: J. Appl. Phys. 82 (1997) 231.
- [Pan85] Pandey, K.C.: in Proceedings of the Seventh International Conference on the Physics of Semiconductors, edited by J. D. Chadi and W. A. Harrison (Springer-Verlag, New York, 1985) 55.
- [Pan 93] Panish, M. B.; Temkin, H.: Gas Source Molecular Beam Epitaxy, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1993.
- [Pap98] Papanicolaou, N.I.; Evangelakis, G.A.; Kallinteris, G.C.: Computational Materials Science 10 (1998) 105.
- [Par85] Parsons, J. D.; Bunshah, R. F.; Stafsudd, O. M.: Sol. State Technol. 28 (1985) 133.
- [Pau81] Paul, R.: Halbleitersonderbauelemente; VEB Verlag Technik, Berlin (1981).
- [Pen87] Peng, L. M. and Cowley, J. M.: J. Electron Microsc. Technique 6 (1987) 43.
- [Pez92] Pezoldt, J.; Kalnin, A; Savelyev, W.D.: Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B65 (1992) 361.
- [Pez94] Pezoldt, J.; Kalnin, A.; Savelyev, W.D.: Z. Kristallographie, Suppl. Issue, 8 (1994) 550.
- [Pez97] Pezoldt, J.; Cimalla, V.; Stauden, Th.; Ecke, G.; Eichhorn, G.; Scharmann, F.; Schipanski, D.: Diamond and Related Materials 6 (1997) 1311.
- [Por95] Porter, M. L.; Davis, R. F.: Materials Science and Engineering B34 (1995) 83.
- [Rai69] Rai-Choudhury, P.; Formigoni, N. P.: J. Electrochem. Soc. 116 (1969) 1440.
- [Ram47] Ramsdell, L., S.: Studies on silicon carbide, Am. Mineralogist 32 (1947) 64.
- [Ram93] Ramm, J.; Beck, E.; Zueger, A.; Domman, A.; Pixeley, R.E.; Thin Solid Films 228 (1993) 23.
- [Raz96] Razeghi, M. and Rogalski, A.: J. Appl. Phys. 79 (1996) 10, 15 May, S. 7433.
- [Rei83] Reid, J.S. :Acta Cryst. A 39 (1983) 1.
- [Rim95] Rimai, L.; Ager, R.; Weber, W.H.; Hangas, J. ; Samman, A.; Zhu, W.; J. Appl. Phys.. 77 (1995) 6601.
- [Rog97] Rogers, D.; Tiedje, T.: J.Vac. Sci. Technol. B15 (1997) 1641.
- [Rük94] Rüker, H.; Methfessel, M.; Bugiel, E. and Osten, H. J. : Phys. Rev. Lett. 72 (1994) 3578.
- [Ruh96] Ruhnau, U.: Epitaktisches Wachstum von β -SiC-schichten auf Siliziumsubstraten durch chemische Gasphasenabscheidung. Dissertation, Universität Stuttgart 1996.
- [Rup98] Rupp, R.; Wiedenhofer, A.; Friedrichs, P.; Peters, D.; Schörner, R. and Stephani, D.: Materials Science Forum Vols. 264-268 (1998) 89.
- [Rup01] Rupp, R.: Compound Semiconductor, Band 7 (2001) 45.
- [Rut74] Rutz, R. F.; Cuomo, J. J.: in: Ref. 3 (1974) 17.
- [Sab97] Sabisch, M.; Krüger, P.; Pollmann, J.: Ab initio calculations of structural and electronic properties of 6H-SiC(0001) surfaces; Physical Review B, Volume 55, Number 16 (15.4.1997) 10561.

- [Sav00] Savage, S.M.; Konstantinov, A.; Saroukhan, A.M. and Harris, C.I.: Mater. Sci. Forum 338-342 (2000) 1431.
- [Sch95] Scholz, R.; Gösele, U.; Niemann, E.; Leidich, D.: Appl. Phys. Lett. 67 (1995) 1453.
- [Sch97] Schröder, K.: Institut für Festkörperforschung Forschungszentrum Jülich GmbH (1997), Nr.28, IFF-Ferienkurs C2.1.
- [Sch98] Schmitt, J.: Wachstum von Siliziumcarbid durch Molekularstrahlepitaxie. Dissertation, Universität Erlangen – Nürnberg 1998.
- [Sch00] Scharmann, F.; Maslarski, P.; Attenberger, W.; Lindner, J.K.N.; Stritzker, B.; Stauden, Th.; Pezoldt, J.; Thin Solid Films 380 (2000) 92.
- [Sea79] Seah, M.P.; Dench, W.A.: Surf. Interf. Anal. 1 (1979) 2.
- [She98] Shek, M. L.: Surf. Sci. 414 (1998) 353.
- [Shi71] Shiotsuka, T. and Toyokura, K.: CEP Symp. Ser. No. 110, 67 (1971) 145.
- [Shk98] Shklyaev, A.A et al.:Surf. Sci. 416 (1998) 192.
- [Shk00] Shklyaev, A.A.; Shibata, M.; Ichikawa, M.: Phys. Rev. B 62, 3 (2000) 1540.
- [Sim97] Simon, L.; Faure, J.; Kubler, L.; Schott, M.: J. Cryst. Growth 180 (1997) 185.
- [Sla75] Slack, G. A.; Bartrams, S.: J. Appl. Phys. 46 (1975) 89.
- [Söh92] Söhnle, O.; Garside, J.: Precipitation - Basic Principles and Industrial Applications, Butterworth-Heinemann Ltd, Oxford, (1992) 77.
- [Son00] Song, X.; Guo, S.; Zorman, C.A.; Wu, C.H.; Yasseen, A.A. and Mehregany, M.: Mater. Sci. Forum 338-342 (2000) 1141.
- [Sop01] Internetadresse: www.sopra-sa.com.
- [Sta95] Schardt, J.; Bram, Ch.; Müller, S.; Starke, U.; Heinz, K.; Müller K.: Surf. Sci. 337 (1995) 232.
- [Sug 86] Sugii, T., Ito, T., Furuma, Y., Doki, M., Mieno, F., Maeda, M., 1986 Sympos. VLSI Technol. San Diego, USA, Mai 28-30, 1986, (1986), 45-46.
- [Sug 89] Sugii, T., Ito, T., Furumura, Y., Doki, M., Mieno, F., Maede, M., IEEE Electron. Dev. Lett. 9 (1988) 87.
- [Sun99] Sun, Y.; Ayabe, T.; Miyasato, T.: Jpn. J. Appl. Phys. 38 (1999) L1166.
- [Sze81] Sze, S. M.: Physics of Semiconductors, Aufl. 2, John Wiley & Sons 1981.
- [Tai77] Tairov, Y. M.; Vodakov, Y.: Topics in Applied Physics Vol. 17, Springer Verlag 31 (1977).
- [Tai78] Tairov, Y. M. and Tsvetkov, V. F.: J. Cryst. Growth 43 (1978) 209.
- [Tak85] Takai, T.; Halicioglu T. and Tiller W.A.: Surf. Sci. 164 (1985) 327.
- [Tak96] Takaoka, T.; Takagaki, T.; Igari, Y.; Kusunoki I.: Surf. Sci.347 (1996) 105.
- [Ter95] Tersoff, J.: Phys. Rev. Lett. 74 (1995) 5080.
- [Tha96] Thanh, V. L.; Aubry-Fortuna, V.; Bouchier, D.; Younsi, A.; Hincelin, G.: Surf. Sci. 369 (1996) 85.
- [Tin95] Tin, C. C.; Hu, R.; Coston, R. L.; Park, J.: J. Cryst. Growth 148 (1995) 116.
- [Toy73] Toyokura, K.: Krist. Technik 8 (1973) 567.

- [Tri94] King D. A. and Woodruff, D.P.: The Chemical Physics of solid surfaces, Vol.7, Elsevier, Amsterdam-London-New York-Tokyo; 1994.
- [Tri 97] Tringides, M. C.: Surface Diffusion Atomistic and Collective Processes, Nato ASI Series, Series B: Physics Vol. 360, pp 509-542.
- [Vai56] Vainshtein, B.K.: Strukturanalyse mit Elektronenbeugung, Verlag Akademie der Wissenschaften, Moskau (1956) 196.
- [Van89] Vanderbilt, D.: Phys. Rev. B36 (1989) 6209.
- [Ven75] Venables, J.A.; Proce, G.R. in: Matthews J.W. (ed.), Epitaxial Growth, Academic Press, New York, 1975, pp.381-436.
- [Voi97] Voigtländer, B.: C3 Experimente zum epitaktischen Wachstum. Institut für Grenzflächenforschung und Vakuumphysik, Forschungszentrum Jülich GmbH (1997), Nr. 28, IFF-Ferienkurs C3.1.
- [Wah00] Wahab, Q.; Ellison, A.; Zhand, J.; Forsberg, U.; Duranova, E.; Henry, A.; Madsen, L.D. and Janzen, E.: Mater. Sci. Forum 338-342 (2000) 1171.
- [Wan 87] Wang, H.; Lin, R. and Wang, X.: Phys. Rev. B 36 (1987) 7712.
- [Wan96] Wang, Z.L.: Reflection electron microscopy and spectroscopy for surface analysis, Georgia Institute of Technology, Atlanta, Georgia, USA, Cambridge University Press 1996.
- [Wei93] Weidmann, G.; Griesche, J.; Jacobs K.: J. Cryst.Growth 133 (1993) 75.
- [Wer98] Werner, P.; Gossmann H.-J. and Jacobsen, D.C.; Gösele, U.: Appl Phys. Lett. 73 (1998).
- [Won95] Wong, T.M.H.; McKinnon, A. W.; Welland, M.E.: Surf. Sci 328 (1995) 227.
- [Woi93] Woicik, J.C.; Kendelewicz, T.; Herrera-Gomez, A.; Andrews, A.B. and Kim, B.S. et. al.: J. Vac. Sci. Technol. A 11 (1993) 2359.
- [Wol97] Wolfram, S.: Das Mathematica Buch, Edison Wesley Longman Verlag GmbH, 1997.
- [Wu97] Wu, K.-H.; Fang, Y.-K.; Zhou, J.-H. and Ho, J.-J.: Jpn. J. Appl. Phys. 36 (1997) 5151.
- [Yos91] Yoshii, K.; Suzuki, Y.; Takeuchi, A.; Yasutake, K. and Kawabe, H.: Thin Solid Films, 199 (1991) 85.
- [Yos92] Yoshinobu, T., Tarui, Y., Fuyuki, T., Matsunami, H.: J. Appl. Phys. 72 (1992) 2006.
- [Zek95] Zekentes, K.; Pecz, B.; Stoemenos, J. J.: J.Cryst. Growth (1995) 392.
- [Zot95] Zotov, A.V.; Ryzhkov, S.V.; Lifshits; V.G.: Surf. Sci. 328 (1995) 95 .

Anhang – Strukturfile für die Simulation

Für die RHEED-Simulation wurden die Koordinaten der Atome in den Oberflächenelementarzellen als Strukturfiles in das Programmpaket eingegeben. Die Art der eingegebenen Atome bestimmte in dem Programm die Auswahl an abgespeicherten Doyle-Turner-Potentialen zur Charakterisierung des Streuverhaltens. Das mittlere innere Potential wird gemäß Abschnitt 8.1 in das Programm eingegeben. Die geometrische Struktureingabe erforderte die Angabe eines Nullpunktes bzw. Bezugspunktes. Von diesem Bezugspunkt ausgehend werden Vektoren angegeben, die eine komplette Oberflächenelementarzelle aufspannen. Die Extinktion gemäß Abschnitt 5.2 wurde mittels Bewertungsfaktoren für die einzelnen Atome, in Abhängigkeit von der z-Position, eingebracht. Das vorliegende Strukturfile beschreibt die Eingabe für die Simulation der Rekonstruktion gemäß Abb. 8.2.3. Die Koordinaten, gemäß der Molekuldynamischen Simulation, werden nach einer Nullpunktverschiebung und einer Division durch die Gitterkonstante des Siliziums in das Programm eingegeben.

	Koordinaten von der MD-Simulation [Å]			Verschiebung um den Nullpunkt und Normierung mit den Gitterkonstanten von Si			Bewertungs- faktor
Si-Atome	x	y	z	x	y	z	
	13,301	11,519	6,541	0,406842008	0,706087916	-0,73110171	0,111529412
	9,976	9,599	6,541	-0,20470848	0,352951996	-0,73110171	0,111529412
	9,976	13,439	6,541	-0,20470848	1,059223837	-0,73110171	0,111529412
	6,651	7,679	6,541	-0,81625897	-0,00018392	-0,73110171	0,111529412
	6,651	11,519	6,541	-0,81625897	0,706087916	-0,73110171	0,111529412
	12,192	9,599	7,325	0,202869229	0,352951996	-0,58690454	0,13180137
	12,192	13,439	7,325	0,202869229	1,059223837	-0,58690454	0,13180137
	8,867	7,679	7,325	-0,40868126	-0,00018392	-0,58690454	0,13180137
	8,867	11,519	7,325	-0,40868126	0,706087916	-0,58690454	0,13180137
	12,191	9,601	9,694	0,202685304	0,353319846	-0,15118632	0,218315311
	12,193	13,438	9,694	0,203053154	1,059039912	-0,15118632	0,218315311
	8,867	7,68	9,695	-0,40868126	0	-0,15100239	0,218361822
	8,863	11,518	9,695	-0,40941696	0,705903991	-0,15100239	0,218361822
	5,504	9,601	9,697	-1,02722089	0,353319846	-0,15063454	0,218454872
Nullpunkt	11,089	7,68	10,516	0	0	0	0,260093931
	11,08	11,523	10,516	-0,00165532	0,706823616	0	0,260093931
	7,742	9,595	10,512	-0,61559684	0,352216296	-0,0007357	0,259872405
Vektor 2	4,326	7,68	10,493	-1,2438845	0	-0,00423027	0,258822728
	11,059	11,562	12,971	-0,00551775	0,713996689	0,451535773	0,438783857
	7,726	9,557	12,97	-0,61853964	0,345227147	0,451351848	0,438690397
	7,799	13,439	12,974	-0,60511311	1,059223837	0,452087548	0,439064356
	9,973	9,599	13,357	-0,20526025	0,352951996	0,522530807	0,476388005
	6,619	7,679	13,756	-0,82214457	-0,00018392	0,595916866	0,518649148
	6,626	11,519	13,357	-0,82085709	0,706087916	0,522530807	0,476388005
	13,301	11,52	15,761	0,406842008	0,706271841	0,964686408	0,794992546
	6,648	11,527	15,757	-0,81681074	0,707559316	0,963950708	0,794315438
	9,975	13,439	16,188	-0,2048924	1,059223837	1,043222365	0,870695466
	6,663	7,68	16,186	-0,81405187	0	1,042854515	0,870324594

Anhang-Strukturfile für die Simulation

	12,191	9,602	16,808	0,202685304	0,35350377	1,15725584	0,993629776
	12,195	13,439	16,809	0,203421004	1,059223837	1,157439765	0,993841462
	8,875	7,681	16,809	-0,40720986	0,000183925	1,157439765	0,993841462
	8,865	11,516	16,807	-0,40904911	0,705536141	1,157071915	0,993418136
Vektor1	14,414	13,438	10,514	0,611550487	1,059039912	-0,00036785	0,259983144
	14,457	13,439	12,971	0,619459261	1,059223837	0,451535773	0,438783857
C-Atome							
	10,582	7,679	14,918	-0,09324995	-0,00018392	0,809637668	0,664315295
	13,905	13,439	14,921	0,517932683	1,059223837	0,810189443	0,664739968
	8,006	10,046	14,913	-0,56704065	0,43516645	0,80871804	0,66360811
	7,229	13,439	14,921	-0,70995034	1,05922384	0,81018944	0,66473997
	11,335	11,082	14,92	0,04524554	0,625712709	0,810005518	0,66459838

Anhang –Abbildungsverzeichnis

Abb.1.1: Möglichkeiten für die Stapelung von Bilagen	Seite 4
Abb. 1.2: Die 3C-SiC Einheitszelle aus verschiedenen Blickrichtungen	Seite 5
Abb. 2.2.1: Schematische Darstellung der drei wichtigsten Wachstumsmoden in Abhängigkeit von der Bedeckung:	Seite 10
Abb. 2.2.2: Beziehungen verschiedener, das Vakuum beschreibender, Größen	Seite 12
Abb. 2.3.1: Klassifizierung der Karbonisierungsverfahren	Seite 17
Abb. 3.1.1: Prinzipskizze eines Niedrigenergie-Wasserstoff-Plasma – Reinigungsmoduls in UHV-Konfiguration	Seite 20
Abb. 3.2.1: Schemazeichnung der verwendeten MBE-Anlage	Seite 22
Abb. 4.1: Prinzipdarstellung des Atomkraftmikroskops	Seite 26
Abb. 5.1.1: Prinzipskizze des RHEED – Systems	Seite 27
Abb. 5.1.2: Verdeutlichung des Entstehens von Beugungspunkten mit der Ewald - Konstruktion.	Seite 29
Abb. 5.1.3: Entstehung von Beugungspunkten auf Lauekreisen bei der 2D Beugung mit RHEED	Seite 30
Abb. 5.1.4: Reflexverbreiterungsmechanismen für RHEED	Seite 31
Abb. 5.2.1: Geometrische Erläuterung des Extinktionskoeffizienten	Seite 34
Abb. 5.3.1: Energiediagramm zur Verdeutlichung der Vergrößerung der kinetischen Energie der Elektronen beim Eindringen in den Kristall.	Seite 37
Abb. 5.3.2: Veränderung der Durchmesser der Lauekreise im Vakuum gegenüber dem Kristallinneren	Seite 39
Abb. 5.3.3: Entstehung der Kikuchilinen	Seite 41
Abb. 5.3.4: Entstehung von aufgespaltenen Kikuchilinen	Seite 42
Abb. 5.3.5: Definition der Größen Θ , α , ϵ , B , S_L und W	Seite 43
Abb. 5.3.6: Reflexions-Kikuchi-Diagramme im $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ Azimut	Seite 45
Abb. 5.3.7: Ermittlung des MIP's	Seite 46
Abb. 6.1: Typische Geometrien von Oberflächenrekonstruktionen	Seite 51

Abb. 7.1.1: RHEED-Bilder der Si(111)-Oberfläche	Seite 54
Abb. 7.1.2: RHEED-Intensitätsverläufe bei der Karbonisierung (SSMBE) der Si(111)-Oberfläche	Seite 56
Abb. 7.1.3: Zeitpunkt des Maximums für einen Kohlenstofffluß von $5,55 \cdot 10^{13}$ Atome $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ umgerechnet in Kohlenstoffmonolagen als Funktion der inversen Temperatur für die Si(111) ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30°-Rekonstruktion	Seite 57
Abb. 7.1.4: Phasendiagramm für die Karbonisierung der Si(111)-Oberfläche	Seite 58
Abb. 7.2.1: RHEED-Bilder der Si(100)-Oberfläche	Seite 62
Abb. 7.2.2: Zeitliche Entwicklung des RHEED-Intensitätsverlaufes bei der Karbonisierung (SSMBE) der Si(100)-Oberfläche	Seite 64
Abb. 7.2.3: Zeitpunkt des Maximums für einen Kohlenstofffluß von $5,7 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ umgerechnet in Kohlenstoffmonolagen als Funktion der inversen Temperatur für die beobachtete Si(100) c(4x4) – C-Rekonstruktion	Seite 66
Abb. 7.2.4: Phasendiagramm für die Karbonisierung der Si(100)-Oberfläche	Seite 67
Abb. 7.4.1: Vergleich zwischen der simulierten Intensitätskurve (durchgezogene Linie) und den experimentellen Meßpunkten der zeitabhängigen Intensität	Seite 76
Abb. 7.4.2: C-Diffusionskoeffizient auf der Si(111)- und der Si(100)- Oberfläche	Seite 77
Abb. 8.2.1: Draufsicht auf die gestrichelt eingezeichnete Oberflächenelementarzelle der ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30°-Rekonstruktion mit einem C-Trimer in H ₃ -Position.	Seite 84
Abb. 8.2.2: Draufsicht auf die gestrichelt eingezeichnete Oberflächenelementarzelle der ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30°-Rekonstruktion mit einem C-Trimer in T ₄ -Position.	Seite 85
Abb. 8.2.3: Draufsicht auf die gestrichelt eingezeichnete Oberflächenelementarzelle der ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30°-Rekonstruktion mit einem C-Trimer in S ₅ -Position.	Seite 86
Abb. 8.2.4: Draufsicht auf die gestrichelt eingezeichnete Oberflächenelementarzelle der ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30°-Rekonstruktion mit einem Kohlenstoffeinzelatom in H ₃ -Position.	Seite 87
Abb. 8.2.5: Draufsicht auf die gestrichelt eingezeichnete Oberflächenelementarzelle der ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30°-Rekonstruktion mit einem Kohlenstoffeinzelatom in T ₄ -Position.	Seite 88
Abb. 8.2.6: Draufsicht auf die gestrichelt eingezeichnete Oberflächenelementarzelle der ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30°-Rekonstruktion mit einem Kohlenstoffeinzelatom in S ₅ -Position.	Seite 89
Abb. 8.2.7: Draufsicht auf die gestrichelt eingezeichnete Oberflächenelementarzelle der ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30°-Rekonstruktion mit einem Kohlenstoffeinzelatom in S ₅ -Position	Seite 90
Abb. 8.3.1: Draufsicht des c(4x4) ' Single Dimer Model '.	Seite 93

Abb. 8.3.2: Draufsicht des c(4x4)- 'Missing Dimer Model '.	Seite 94
Abb. 8.3.3: Draufsicht des c(4x4)- 'π Bindungs-Defekt Modell ' nach [Pan85].	Seite 95
Abb. 8.3.4: Draufsicht auf das Modell einer c(4x4) mit der Dreierkonfiguration von zwei Si-Dimeren und einem C-Dimer gemäß [Lei99].	Seite 96
Abb. 8.4.1.1: Beugungsbilder von einem 33R-SiC Kristall	Seite 98
Tabelle 8.4.1.1: Prinzipdarstellung der dreidimensionalen Beugungspunkte für den 33R – SiC Polytyp im $[11\bar{2}0]$ -Azimut.	Seite 99
Abb. 8.4.2.1: Intensitätsprofil des (01)–Gitterstabes von 3C-SiC bei einem Einfallswinkel von $1,3^\circ$ für unterschiedliche Polaritäten der Oberfläche.	Seite 100
Abb. 8.4.2.2: Intensitätsprofil des (01) – Gitterstabes von 4H- bzw. 6H-SiC	Seite 102
Abb. 8.4.2.3: Intensitätsprofil des (01)-Gitterstabes für 6H-SiC	Seite 103
Abb. 9.1.1: AFM Bilder ($1 \times 1 \mu\text{m}^2$) nach Karbonisierung auf der Si(111)-Oberfläche bei einer konstanten Temperatur von 660°C	Seite 107
Abb. 9.1.2: Keimdichte in Abhängigkeit von der Rate für die Si(111)-Oberfläche	Seite 108
Abb. 9.1.3: Keimdichte in Abhängigkeit von der Rate für die Si(100) – Oberfläche	Seite 109
Abb. 9.2.1.1: Polynukleares Wachstum des Primärkeimes	Seite 112
Abb. 9.2.1.2: Inkubationszeit für die SiC-Bildung in Abhängigkeit von dem Kohlenstofffluß bei einer Prozeßtemperatur von 660°C	Seite 115
Abb. 9.2.2.1: Experimentelle und simulierte Wachstumsgeschwindigkeiten für Si(100) und Si(111) bei einer Prozeßtemperatur von 660°C	Seite 118
Abb. 9.2.2.2: Mittlere Wachstumsgeschwindigkeit des 3C-SiC-Wachstums als Funktion des C_2H_4 Angebotes bei 660°C für Si(111).	Seite 119
Abb. 9.2.2.3: TEM Bild einer Si(111) Probe, welche 55s einem Kohlenstofffluß von $5,5 \cdot 10^{13}$ Atomen $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ bei einer Substrattemperatur von 660°C ausgesetzt war	Seite 119
Abb. 9.2.2.4: Keimdurchmesser in Abhängigkeit von der Temperatur bei einem C-Fluß von $5,5 \times 10^{13}$ Atome $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$	Seite 123
Abb. 9.2.2.5: AFM-Bild ($2 \times 2 \mu\text{m}$) einer karbonisierten Si(111) – Oberfläche (on axis $0,2^\circ$), C-Rate 3, 55 s nach Prozeßstart, Prozeßtemperatur 1065°C ,	Seite 123
Abb. 9.3.1: Erläuterung des SiC-Wachstums auf Si und der Morphologie der SiC-Schichten.	Seite 125

Anhang – Tabellenverzeichnis

Tabelle 1.1: Physikalische Parameter von Silizium und Kohlenstoff Seite 3

Tabelle 1.2: Vergleich wichtiger Eigenschaften Seite 7

Tab. 3.2.1: Zusammenhang zwischen der rel. C-Rate R_C und der Absoluteichung Seite 23

Tabelle 7.1.1: Darstellung des reziproken Raumes für die (7x7)- und der
($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R_{30° -C Rekonstruktion in der Si(111) Ebene Seite 55

Tabelle 7.2.1: Prinzipdarstellung des reziproken Raumes für die Rekonstruktionen auf der
Si(100) – Oberfläche Seite 63

Bereits publizierte Ergebnisse

Publikationen

- 1) J. Pezoldt, V. Cimalla, Th. Stauden, G. Ecke, G. Eichhorn, F. Scharmann, D. Schipanski; Chemical conversion of Si to SiC by solid source MBE and RTCVD; Diamond and Related Materials 6 (1997) 1311- 1315.
- 2) V. Cimalla, Th. Stauden, G. Ecke, F. Scharmann, S. Sloboshanin, J. A. Schaefer, Initial stages in the carbonisation of (111)Si by solid source molecular epitaxie; G. Eichhorn, J. Pezoldt; Appl. Phys. Letters (1998) 3542-3544.
- 3) F. Scharmann, G. Teichert, G. Eichhorn, J. Pezoldt; Polytypanalyse von Epitaxieschichten mit RHEED; 43rd International Scientific Colloquium, Technical University of Ilmenau, Sept. 21.-24. (1998) 571 – 576.
- 4) F. Scharmann, J. Pezoldt, V. Cimalla, Th. Stauden, G. Eichhorn; Kohlenstoff induzierte Rekonstruktionen auf Si - Oberflächen; 43rd International Scientific Colloquium, Technical University of Ilmenau, Sept. 21-24 (1998) 648 – 653.
- 5) F. Scharmann, P. Maslarski, W. Attenberger, J. K. N. Lindner, B. Stritzker, Th. Stauden, J. Pezoldt; Investigation of the nucleation and growth of SiC nanostructures on Si; Thin Solid Films 380 (2000) 92-96.
- 6) F. Scharmann, P. Maslarski, D. Lehmkuhl, Th. Stauden, J. Pezoldt; Evaluation of carbon surface diffusion on silicon by using surface phase transitions; Fourth International Workshop on Nondestructive Testing and Computer Simulations in Science and Engineering, SPIE Proceeding vol. 4348, (2001) 173 – 177.
- 7) P.V. Rybin, D. V. Kulikov, Yu. V. Trushin, R. A. Yankov, M. Voelskow, F. Scharmann, J. Pezoldt; Theoretical and Experimental Investigations of Defect Evolution in Silicon Carbide During N⁺ and Al⁺ Ion Implantation Taking into account Internal Stress Fields; Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B; 178 (2001) 269 – 274.
- 8) V. Cimalla, K. Zekentes, K. Tsagaraki, Th. Stauden, F. Scharmann, J. Pezoldt; In situ RHEED Studies on the Influence of Ge on the Early Stages of SiC on Si(111) and (100) Surfaces; Materials Science Forum 353 (2001) 187 – 190.
- 9) C. Koitzsch, F. Scharmann, K. Scheerschmidt, J. Pezoldt; Carbon induced Reconstructions on Si(111) investigated by RHEED and Empirical Molecular Dynamics; Appl. Surf. Sci. (2001) in print.

Tagungsbeiträge

- 1) F. Scharmann, J. Pezoldt, V. Cimalla, Th. Stauden, G. Eichhorn; Kohlenstoff induzierte Rekonstruktionen auf Si - Oberflächen; 43rd International Scientific Colloquium, Technical University of Ilmenau, Sept. 21.- 24. (1998), Poster
- 2) F. Scharmann, G. Teichert, G. Eichhorn, J. Pezoldt; Polytypanalyse von Epitaxieschichten mit RHEED; 43rd International Scientific Colloquium, Technical University of Ilmenau, Sept. 21.-24. (1998), Vortrag
- 3) Th. Stauden, V. Cimalla, F. Scharmann, G. Eichhorn, J. Pezoldt; Stadien der Konvertierung von Silicium zu SiC; MBE -Workshop, Technische Universität Hamburg, Sept. 21.- 22. (1998), Vortrag
- 4) F.Scharmann, Th. Stauden, G. Eichhorn, J. Pezoldt; Kohlenstoff induzierte Oberflächenrekonstruktionen auf Siliziumoberflächen; DPG - Tagung in Münster; März 22. – 26. (1999), Vortrag
- 5) Th. Stauden, V. Cimalla, F. Scharmann, G. Eichhorn, J. Pezoldt; Low Temperature Conversion of Silicon into Silicon Carbide; Advanced Semiconductor Wafer Engineering, AM T 3.6 Symposium T, MRS - Spring meeting 1999, April 5. – 9. (1999), San Francisco, California, Vortrag
- 6) P.V. Rybin, D. V. Kulikov, Yu. V. Trushin, R. A. Yankov, M. Voelskow, F. Scharmann, J. Pezoldt; Theoretical and Experimental Investigations of Defect Evolution in Silicon Carbide During N⁺ and Al⁺ Ion Implantation Taking into account Internal Stress Fields; E-MRS-IUMRS-ICEM 2000, Symposium R-I, Mai 30. – Juni 6. (2000), Strasbourg, Poster
- 7) F. Scharmann, P. Maslarski, W. Attenberger, J. K. N. Lindner, B. Stritzker, Th. Stauden, J. Pezoldt; Investigation of the nucleation and growth of SiC nanostructures on Si; E-MRS-IUMRS-ICEM 2000, Symposium F-III, Mai 30. – Juni 6. (2000), Strasbourg, Poster
- 8) F. Scharmann, P. Maslarski, D. Lehmkuhl, Th. Stauden, J. Pezoldt; Evaluation of carbon surface diffusion on silicon by using surface phase transitions; Fourth International Workshop on Nondestructive Testing and Computer Simulations in Science and Engineering, Juni 12. – 17. (2000), Petersburg, Russia, Vortrag
- 9) C. Koitzsch, F. Scharmann, K. Scheerschmidt, J. Pezoldt; Carbon induced Reconstructions on Si(111) investigated by RHEED and Empirical Molecular Dynamics; Angewandte Oberflächenanalytik AOFA 11, September 24.- 28. (2000), Leipzig, Poster

Lebenslauf

Name: Friedhelm Scharmann

Geboren: 23.04.1964 in Rheda-Wd., Kreis Gütersloh

Staatsangehörigkeit : deutsch

Familienstand: ledig

Schulbildung: 1970 - 1974: Grundschule
1974 - 1975: Hauptschule
1975 – 1981: Realschule
1981 – 1984: Gymnasium

Wehrdienst: 1984 – 1985

Berufsausbildung: 1985 – 1987: Berufsfachschule für Technische Assistenten
in Olsberg

Studium: 1987 – 1989: Chemie an der Universität – Gesamthochschule –
Paderborn
1989 – 1991: Elektrotechnik an der Universität – Gesamthochschule-
Paderborn
1991 – 1993: Sonderstudienverlaufsplan in ET an der Universität-
Gesamthochschule-Paderborn
1993 – 1996: Elektrotechnik an der TU Ilmenau, Dipl.-Ing.
6/96 - 1/00 : Promotionsstudent an der TU Ilmenau
2/00 - 10/00 : wissenschaftlicher Mitarbeiter an der TU Ilmenau
seit 11/00 : Promotionsstudent

Danksagung

Mein besonderer Dank gilt den Herrn Dr. J. Pezoldt und Dr. G. Eichhorn für die interessante Themenstellung, das ständige Interesse am Fortgang der Arbeit und die Hilfsbereitschaft, mich mit ihrer fachlichen Kompetenz bei der Lösung auftretender Probleme zu unterstützen.

Für die Bedienung der MBE möchte ich mich bei Herrn Dr. Th. Stauden bedanken. Er hat durch seine Arbeit wesentlich dazu beigetragen, daß die technischen Probleme beim Betrieb der MBE-Anlage beseitigt werden konnten.

Dem Institut für Werkstoffe der TU Ilmenau schulde ich Dank für die Bereitstellung des Atomkraftmikroskops.

Die Modellierung des Keimbildungsprozesses wäre ohne die TEM-Aufnahmen von PD Dr. J.K.N. Lindner und Herrn W. Attenberger vom Institut für Physik der Universität Augsburg nicht möglich gewesen.

Herzlich bedanken möchte mich auch bei C. Koitzsch vom Department de Physique der Universite de Fribourg für die Molekulardynamischen-Simulationen.

In besonderer Weise möchte ich auch das oft mühselige Auswerten der RHEED-Timescans von Plamen Maslarski würdigen. Im Rahmen seiner Diplomarbeit hatte er dazu beigetragen die Karbonisierungsexperimente hinsichtlich einer Temperatur- und C-Ratenvariation zu klassifizieren.

Mein besonderer Dank gilt Ilona für das Zeichnen vieler Abbildungen mit Corel Draw und ihrer humorvollen Art.

Ich bedanke mich bei allen anderen netten Menschen im FG Nanotechnologie für das stets anregende Arbeitsklima.

Ohne die Unterstützung meiner Eltern und die Geduld von Regina hätte ich diese Dissertation nicht durchführen können.

Erklärung

Hiermit erkläre ich,

- daß ich die vorliegende Dissertation selbst und ohne unerlaubte Hilfsmittel angefertigt habe.
- daß alle von mir benutzten Hilfsmittel und Quellen in der Arbeit angegeben sind.
- daß ich die Dissertation oder Teile davon noch nicht als Prüfungsarbeit für eine staatliche oder andere wissenschaftliche Prüfung eingereicht habe.
- daß ich die gleiche oder eine andere Abhandlung nicht bei einer anderen Fakultät oder einer anderen Universität als Dissertation eingereicht habe.

Ilmenau, 14.05.01

Friedhelm Scharmann